

## Über die Verwendung von Geigerzählern zur Erzielung hoher Empfindlichkeit und schneller Anzeige bei massenspektroskopischen Untersuchungen

Von FRITZ KIRCHNER

Mit 1 Textabbildung

(Eingegangen am 1. September 1960)

### *Die Verwendung von Multipliern in der Massenspektroskopie*

Zur Intensitätsmessung bei massenspektroskopischen Untersuchungen und ihren praktischen Anwendungen werden bis jetzt fast ausschließlich elektronische Verfahren verwendet, die auf die Messung auf elektronischem Wege verstärkten Ionenstroms betreffenden Teilchenart hinauslaufen. Eine wesentliche Steigerung der Meßempfindlichkeit und gleichzeitig eine erhebliche Abkürzung der Meßzeit ließ sich nach J. S. ALLEN [1] durch Anwendung von undärelektronenvervielfachern erreichen, wobei die erfassenden Ionen unmittelbar auf die erste Dynode des Vervielfachers geleitet werden und dort Sekundärelektronen auslösen. Dieses Verfahren ist zwar bei vielen Untersuchungen, z. B. von M. G. INGRAM und seinen Mitarbeitern, erfolgreich angewendet worden; die allgemeine Verwendung scheitert aber daran, daß die Empfindlichkeit des Sekundärelektronenvervielfachers bei jeder Belüftung der Apparatur in schwer kontrollierbarer Weise ändert und daher fast bei jeder Untersuchung eine neue „Formierung“ der Dynoden des Vervielfachers erforderlich ist. Zur Vermeidung dieser Schwierigkeit ist von anderen Autoren [2] vorgeschlagen worden, die massenspektrometrisch ausgesonderten Ionen auf einen Leuchtphosphor fallen zu lassen und das dort erzeugte Licht zur Hilfe von konventionellen Photomultipliern zu benutzen. Um die störenden Ermüdungserscheinungen, die unter Ionenbeschuß bei den hierfür in Frage kommenden Phosphoren auftreten, zu vermeiden, ist ferner vorgeschlagen worden, die Ionen zunächst mit 10 bis 20 kV auf einen Auffänger zu beschleunigen und erst die dort ausgelösten Sekundärelektronen nach dem Durchlaufen der gleichen Beschleunigungsspannung zur Erregung des Leuchtphosphors zu benutzen und das von ihnen erregte Licht außen mit einem gewöhnlichen Photomultiplier registrieren [3]. Aber abgesehen davon, daß die undärelektronenausbeute stark von der Oberflächenbeschaffenheit des Auffängers und von der Energie der Ionen abhängt, bringt die Verwendung von konventionellen Photomultipliern den Nachteil mit sich, daß der Nachweis von Teilchen, die eine Energie nur wenigen keV haben, durch den bei gewöhnlicher Temperatur sehr beträchtlichen Nulleffekt so erheblich erschwert wird, daß es sich selbst bei Geräten, die für die Messung der  $\beta$ -Strahlung des radioaktiven Kohlenstoffisotops  $C^{14}$  mit einer mittleren Energie von etwa 100 keV konstruiert worden sind, trotz Verwendung von ausgesuchten guten Photomultipliern als notwendig erwiesen hat, zur Herabdrückung der Störstrahlung durch den Nulleffekt zwei Photomultiplier in

Koinzidenzschaltung in einer Kühltruhe zu montieren!

Die erwähnten Schwierigkeiten, insbesondere die schlecht definierte Sekundärelektronenausbeute der Ionen und der große Aufwand, sind offenbar die Gründe dafür, daß die Multiplier trotz guter Anfangserfolge in der Massenspektroskopie bisher noch keine allgemeine Anwendung gefunden haben.

### *II. Bisherige Versuche zur Verwendung von Geigerzählern*

Es erschien deshalb wünschenswert, die Anwendungsmöglichkeiten der Geigerzähler in der Massenspektroskopie einer näheren Untersuchung zu unterziehen, nachdem sich aus den Versuchen von H. KIRCHNER und dem Verf. [4] mit fensterlosen, lediglich durch enge Blenden vom Massenspektrometer getrennten Zählern die Möglichkeit ergeben hatte, spektrometrisch ausgesonderte Ionen beliebiger Masse im Zähler einzeln zu registrieren.

Der Nachweis, daß sich außer Wasserstoffionen auch schwerere Ionen mit einem Geigerzähler in einer sehr einfachen Versuchsanordnung registrieren lassen, wurde mit einer Kanalstrahlröhre als Ionenquelle und einem Parabelspektrographen als Analysator erbracht [4]. Bei diesen ersten Versuchen war der Zählerraum vom Spektrometerraum durch zwei in kleinem Abstand (1 mm) hintereinander angebrachte Lochblenden von 0,2 und 0,1 mm Durchmesser getrennt, und der Zwischenraum zwischen diesen beiden Blenden wurde mit einer zweistufigen rotierenden Vorvakuumpumpe evakuiert. Das Druckgefälle zwischen Zählraum (etwa 50 Torr) und Spektrometerraum (etwa  $10^{-5}$  Torr) war auf diese Weise auf 2 Stufen verteilt; in der Zwischenstufe herrschte ein Druck von etwa 0,1 Torr. Zum Nachweis der Ionen wurde bei diesen Versuchen ein Geigerscher Spitzenzähler verwendet. Nach einer genaueren Analyse der Ionen, die von E. CASPARY [5] mit Hilfe dieser Versuchsanordnung durchgeführt wurde, werden die verschiedenen Ionen erst von einer bestimmten Mindestenergie an registriert, die bei einigen Tausend e-Volt, und zwar bei den verschiedenen Ionen verschieden hoch lag.

Später stellte H. BARON [6], [7] fest, daß man bei Verwendung engerer Blenden auch ohne Zwischenstufen auskommen kann. Bei diesen weiteren Untersuchungen wurde eine Elektronenstoß-Ionenquelle von der bei massenspektroskopischen Untersuchungen üblichen Bauart verwendet; zur Analyse der Ionen diente ein einfach fokussierendes  $60^\circ$ -Massenspektrometer, dessen Bahnradius 6 cm betrug. An der Stelle des Austrittsspalts des Spektrometers befand sich die Eintrittsblende zum Zähler; wegen der



einfacheren Betriebsweise wurde hier bei den weiteren Versuchen statt des Spitzenzählers ein Zählrohr benutzt. Unter diesen Betriebsbedingungen reichte selbst ein Blendendurchmesser von nur 0,005 mm noch zur Aufnahme eines normalen Massenspektrogramms völlig aus [6]. Mit dieser Versuchsanordnung konnte kein Schwellenwert für den Nachweis schwerer Ionen mehr festgestellt werden, wie er bei den früheren Versuchen gefunden worden war; sondern alle Ionen waren schon von der kleinsten verwendeten Beschleunigungsspannung (600 V) an nachweisbar. Das Intensitätsverhältnis der schweren zu den leichten Ionen stieg aber unter sonst konstant gehaltenen Versuchsbedingungen mit der Spannung an bis zu einem konstanten Endwert, der bei einer um so höheren Beschleunigungsspannung lag, je höher der Zählgasdruck gewählt wurde; der Endwert des Intensitätsverhältnisses erwies sich dabei als unabhängig vom Zählgasdruck. Bei einem Zählgasdruck von 20 Torr wurde das konstante Intensitätsverhältnis der Masse 40 zu der Masse 2 bereits bei einer Beschleunigungsspannung von 1500 V erreicht; aus diesem Befund konnte der Schluß gezogen werden, daß unter den verwendeten Versuchsbedingungen die Ionen verschiedener Massen mit gleicher Wahrscheinlichkeit zur Registrierung kommen, wenn die Ionenenergie über 1500 eV liegt [7]. Nach den sonstigen Erfahrungen über den Nachweis einzelner Teilchen mit Hilfe der Geigerzähler darf man annehmen, daß der bei diesen Versuchen gemessene konstante Grenzwert des Intensitätsverhältnisses dem Fall entspricht, daß jedes einzelne in den Zähler eintretende Ion registriert wird. Die Tatsache, daß die Beschleunigungsspannung, bei der der konstante Endwert erreicht wird, vom Zählgasdruck abhängt, weist darauf hin, daß der Druckverlauf unmittelbar vor der Zählerblende, aus der das Zählgas in den Spektrometerraum strömt, bei niedrigen Beschleunigungsspannungen bestimmend dafür ist, ob die auf die Blende zulaufenden Ionen in das Zählvolumen eintreten und dort registriert werden können; nach diesem Befund wird nun auch verständlich, daß bei den früheren Versuchen, bei denen eine Zwischendruckstufe mit Vorkammerdruck verwendet wurde, ein „Schwellenwert“ für das Ansprechen des Zählers auf schwerere Ionen gefunden wurde.

Um die Intensitätsverhältnisse in größeren Energiebereichen untersuchen zu können, war bei den zuletzt beschriebenen Versuchen eine Nachbeschleunigungsstufe eingebaut worden, durch die die Ionen nach dem Durchlaufen des magnetischen Ablenkungsfeldes um mehrere Tausend Volt zusätzlich beschleunigt werden konnten. Dadurch wurde die Möglichkeit eröffnet, schwerere Ionen von verhältnismäßig niedriger Primärenergie durch das Spektrometer laufen zu lassen, um sie dann nachträglich so weit zu beschleunigen, daß sie mit Sicherheit im Zählrohr registriert werden.

Neben den schon erwähnten Vorteilen, die die Verwendung von Geigerzählern in der Massenspektroskopie bietet, hatten sich aber auch bei den zuletzt erwähnten Versuchen noch Nachteile gegenüber anderen hochempfindlichen Ionennachweisverfahren ergeben:

1. Die dauernde Zählgasströmung durch die Zählerblende in das Massenspektrometer führt dazu, daß die Atome des Zählgases sich im „Restspektrum“ störend bemerkbar machen.

2. Der verwendete kleine Blendendurchmesser (0,01 oder 0,005 mm) hat zur Folge, daß nur ein geringer Bruchteil der gesamten, in die Höhe des Zählers gelangenden Ionenintensität zur Registrierung gelangt.

3. Die höchstmögliche Zählrate von Geigerzählern ist wegen ihrer verhältnismäßig großen „Totzeit“ erheblich niedriger als von Multipliern.

Von diesen Nachteilen ist allerdings der zuletzt genannte praktisch belanglos; denn wenn die Zählrate für einen Geigerzähler zu hoch wird, läßt sie sich von der Ionenquelle her in leicht kontrollierbarer Weise durch Reduktion der Gesamtintensität herabsetzen.

Wie man die beiden zuerst erwähnten Nachteile beseitigen kann, soll im nächsten Abschnitt gezeigt werden.

### III. Verbesserte Neukonstruktion des Zählrohr-Massenspektrometers

Bei den oben erwähnten Versuchen von H. BARO lag die Zählrohr-Eintrittsblende an der Stelle des Spektrometer-Austrittsspals und der Spektrometerraum war nur durch diese eine Blende vom Zählraum getrennt. Wenn sich trotz der verwendeten engen Blenden die Zählgasströmung im Restspektrum störend bemerkbar macht, so besteht kein Zweifel daran, daß sich diese Störung nur dadurch beseitigen läßt, daß man zwischen Spektrometer-Austrittsspalt und Zählrohr-Eintrittsblende eine Zwischendruckstufe ähnlich wie bei den ersten Versuchen mit dem Spitzenzähler, einschaltet. Um nun aber in dieser Zwischendruckstufe gleichzeitig auch den zweiten Nachteil beseitigen zu können, wird sie nicht mehr nur mit einer Vorpumpe, sondern mit einer Hochvakuum-Ölfusionspumpe von 100 bis 120 Liter/sec Saugleistung evakuiert, und zwar unter Verwendung einer so kurzen und weiten Saugleitung, daß die hohe Saugleistung der Pumpe praktisch ungeschwächt zur Wirkung kommt. Der Gasdruck in der Zwischenstufe wird dann niedrig genug, so daß es nicht mehr nötig ist, den Abstand zwischen Spektrometer-Austrittsspalt und Zähler-Eintrittsblende klein zu halten. Die Zählerblende weite und der Zählgasdruck werden so gewählt, daß in der Zwischenstufe ein Druck von  $10^{-4}$  Torr oder darunter herrscht. Bei Verwendung eines Spektrometerraustrittsspals von  $0,05 \times 2 \text{ mm}^2$  beträgt der Partialdruck des Zählgases im Spektrometerraum auch wenn dieser nur mit einer Saugleistung von 10 Liter/sec evakuiert wird, nur noch  $10^{-7}$  Torr; der störende Einfluß des Zählgases ist demnach unter den üblichen Bedingungen, unter denen der Partialdruck des von den Spektrometerwänden stammenden Restgases erheblich höher ist, nicht mehr zu befürchten. Um den Restgasdruck in der Zwischenstufe auf  $10^{-4}$  Torr oder darunter zu halten, darf freilich auch bei voller Ausnutzung der Pumpausgeschwindigkeit von etwa 100 Liter/sec die Fläche der Zähler-Eintrittsblende nicht größer als etwa  $2 \cdot 10^{-3} \text{ m}^2$  sein; bei einer Blendenspaltlänge von 2 mm würde dies einer Spaltweite von 0,001 mm entsprechen. Ob zusätzliche Maßnahmen würde man demnach nur im Falle der Verwendung von extrem engen Spektrometerspalten den Intensitätsverlust infolge der „Eintrittspupille“ am Zähler vermeiden können. Man kann aber auch bei Verwendung der üblichen Spektrometer Spaltweiten, z. B. von 0,02 mm, leicht erreichen, daß



das aus dem Spektrometerspalt in die Zwischenstufe austretende Ionenbündel in seinem *gesamten* Querschnitt in die Zählerblende eintritt, und zwar dadurch, daß man mit Hilfe von elektrischen Ionenlinsen den Spektrometer-Austrittsspalt in genügend verkleinertem Maßstab auf den Zähler-Eintrittsspalt abbildet. Die hierfür benutzte Anordnung ist aus Abb. 1 ersichtlich. Die aus dem Spektrometerspalt SpS divergent austretenden Ionenstrahlen werden zunächst in einer „Immersionslinse“  $L_1$  parallel gemacht und gleichzeitig um einige kV nachbeschleunigt. Nach dem Durchlaufen eines zylindrischen Rohres treten sie in die „Einzellinse“  $L_2$  ein, von der sie auf den unmittelbar dahinter liegenden Zählerspalt ZS fokussiert werden. Innerhalb des zylindrischen Rohres befinden

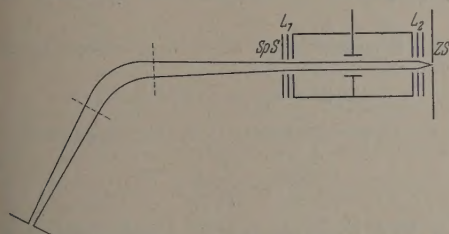


Abb. 1. Strahlengang im Zählrohr-Massenspektrometer (links 60°-Massenspektrometer, rechts Beschleunigungs- und Fokussierungsstufe)

sich zwei senkrecht zueinander angeordnete Plattenkondensatoren, an die veränderliche Spannungen zwecks Feinjustierung des Ionenstrahls angelegt werden.

Der zu den Versuchen verwendete Zählerspalt — Spaltweite: 0,003 mm, Länge: 0,2 mm — wurde folgendermaßen hergestellt: In einige kleine Stücke Aluminiumfolie von 0,03 mm Dicke wurden mit einer Rasierklinge feine kurze Schnitte gemacht, die bei vorsichtiger Führung der Klinge sehr enge und gleichmäßige Spalte (bis 0,002 mm und darunter) liefern. Die Folien mit den besten Spalten wurden dann unter dem Mikroskop mittels Pizein auf ein Bohrloch von 0,2 bis 0,3 mm Durchmesser vakuumdicht aufgekittet, das sich in einer dünnen, unmittelbar in die Zählrohrwand einmontierbaren Messingscheibe befand.

Zur Registrierung der in das Zählrohr eintretenden Ionen wurde ein kommerzielles Strahlungsmeßgerät mit akustischer Zählkontrolle und Integrator verwendet; die in dem Gerät normierten und integrierten Zählrohrimpulse wurden einem Linienschreiber zugeführt. Einige Versuche wurden auch in der Weise durchgeführt, daß die von den integrierten Zählrohr-Impulsen verursachte Spannung auf die  $y$ -Platten eines Elektronenstrahloszillographen gegeben und die Ionenbeschleunigungsspannung oder der Magnetstrom synchron mit der  $x$ -Ablenkung des Elektronenstrahls verändert wurde; die Intensität der integrierten Zählrohr-Impulse war dann auch bei Verwendung von Spektrometerspaltweiten von wenigen Hundertstel mm noch groß genug, um das Spektrum eines breiten Massenbereichs im Verlauf von wenigen Sekunden auf dem Leuchtschirm anzuzeigen.

Von der beschriebenen Verwendung von Geigerzählern für die Zählung einzelner Ionen kann grundsätzlich bei allen Untersuchungen Gebrauch gemacht werden, bei denen es auf hohe Nachweis- und Meßempfindlichkeit für Ionen beliebiger Energie ankommt.

Bei solchen Methoden, bei denen mit Ionenstrahlen von großem Querschnitt gearbeitet wird, wie beim Laufzeit-Massenspektrometer [8] oder beim „Massenfilter“ [9], sind allerdings die Anwendungsbedingungen weniger günstig, wie bei den hier beschriebenen Versuchen mit einem konventionellen Massenspektrometer, bei dem ohnehin mit einem eng ausgeblendeten Strahlenbündel gearbeitet wird. Bei großem Strahlquerschnitt wird es schwieriger, alle vorhandenen Ionen auf die enge Zählerblende zu fokussieren; bei verbesserter Ionenoptik sollte aber auch in diesem Falle noch die Erfassung aller vorhandenen Ionen möglich sein.

Die Untersuchungen zur Verwendung von Geigerzählern für massenspektrometrische Messungen wurden in dankenswerter Weise aus Mitteln des Landes Nordrhein-Westfalen unterstützt. Ferner habe ich den Herren Dipl.-Phys. A. BENNINGHOVEN und R. SCHMIDT für ihre eifrige Mitarbeit bei der Durchführung und experimentellen Erprobung der oben beschriebenen letzten Konstruktionsform des Zählrohr-Massenspektrometers zu danken.

### Zusammenfassung

Es wird eine zusammenfassende Übersicht über die früheren Untersuchungen zur Verwendbarkeit von Geigerzählern in der Massenspektroskopie und über ihre Resultate gegeben. Gegenüber anderen hochempfindlichen Ionennachweismethoden, die auf der Verwendung von Multipliern beruhen, bietet die Verwendung von Geigerzählern die Vorteile der größeren Betriebssicherheit und wesentlich geringeren Störanfälligkeit, der größeren Konstanz der Empfindlichkeit und damit der besseren Reproduzierbarkeit der Meßergebnisse und des geringeren apparativen Aufwands; diesen Vorteilen standen nach den bisherigen Versuchen die Nachteile gegenüber, daß die ständige Zählgasströmung durch die Zählerblende in das Spektrometer zu einer störenden Vergroßerung des Restgas-Spektrums führt und daß infolge des kleinen Durchmessers der Zählerblende nur ein geringer Bruchteil der gesamten in die Höhe des Zählers gelangenden Ionenintensität zur Registrierung kommt.

Es wird eine Neukonstruktion des Zählrohr-Massenspektrometers beschrieben, in der diese Nachteile durch die Verwendung einer Zwischendruckstufe beseitigt werden, die mittels einer Öldiffusionspumpe hoher Saugleistung auf mindestens  $10^{-4}$  Torr evakuiert wird. Innerhalb der Zwischenstufe wird der Ionenstrahl zunächst in einer Immersionslinse nachbeschleunigt und dann mittels einer Einzellinse auf den Zählerspalt (Spaltweite 0,003 mm, -länge 0,2 mm) fokussiert. Das Gerät ermöglicht einerseits durch die Zählung und Messung der einzelnen massenspektrometrisch ausgesonderten Ionen beliebiger Energie die Erreichung der höchsten massenspektrometrischen Meßempfindlichkeit; andererseits reicht die Intensität der integrierten Zählrohrimpulse auch bei Verwendung von engen Spektrometerspalten, also bei hohem Auflösungsvermögen, aus, um das Spektrum eines breiten Massenbereichs in wenigen Sekunden auf dem Leuchtschirm eines Elektronenstrahl-Oszillographen anzuzeigen.

**Literatur:** [1] ALLEN, J. S.: Phys. Rev. **55**, 336, 966 (1939). — [2] RICHARDS, P. J., and E. E. HAYS: Rev. Sci. Instrum. **21**, 99 (1950). — [3] SCHÜTZE, W., u. F. BERNHARD:



Z. Physik **145**, 44 (1956); vgl. auch W. HARTMANN u. F. BERNHARD, Fotovervielfacher und ihre Anwendung in der Kernphysik. Berlin: Akad. Verlag 1957. — [4] KIRCHNER, F. u. H.: Naturwissenschaften **42**, 12 (1955). — [5] CASPARY, E.: Diss. Köln 1956. — [6] BARON, H.: Dipl.-Arb. Köln 1956; vgl. auch F. KIRCHNER, H. BARON, u. H. KIRCHNER, Forsch.-Ber. Nr. 583

des Wirtsch. u. Verkehrsminist. Nordrhein-Westfalen 1958. [7] BARON, H.: Diss. Köln 1959. — [8] BENNETT, W. H.: J. Appl. Phys. **21**, 143 (1950). — [9] PAUL, W., H. P. REINHARD U. v. ZAHN: Z. Physik **152**, 143 (1958).

Prof. Dr. FRITZ KIRCHNER,  
I. Phys. Inst. d. Univ. Köln

## Zur Theorie der Bremsstrahlung in Wasserstoffplasmen unter Berücksichtigung des Gaunt-Faktors

Von HERBERT SCHIRMER \*

Mit 2 Textabbildungen

(Eingegangen am 23. September 1960)

### 1. Einleitung

Die Theorie der Plasmastrahlung ist in Arbeiten von UNSÖLD [1] und von MAECKER und PETERS [2] auf der Grundlage der Theorie von KRAMERS behandelt worden. Die Quantenmechanik liefert noch einen Faktor, den Gaunt-Faktor  $g$  [3], [4], der häufig im Sinne der sog. „weichen Näherung“ konstant gleich eins gesetzt wird. Da  $g$  exakt nur in unhandlicher Form, nämlich nach SOMMERFELD [5] als Ableitung des Quadrats der hypergeometrischen Funktion, greifbar ist, sind verschiedene Ausdrücke entwickelt worden, die jedoch nur in gewissen Bereichen, und auch dann nur näherungsweise, brauchbar sind; sie sind im einzelnen von KUMMERER [6] diskutiert worden. Es erscheint aus diesen Gründen zweckmäßig,  $g$  durch numerische Berechnungen diagrammatisch so weitgehend wie möglich zu erfassen.

Den folgenden Überlegungen liegt die Theorie von SOMMERFELD [5] zugrunde, die die gesamte auf die Frequenzeinheit bezogene Strahlungsleistung eines homogenen Elektronenstromes der Geschwindigkeit  $v$  nichtrelativistisch ohne Berücksichtigung der Retardierung erfaßt. Die Theorie liefert daher exakte Resultate bis zu einer Energie des Elektronenstromes von einigen kV [7]; dies bedeutet, auf Plasmen bezogen, daß Temperaturen bis  $10^8$  °K erfaßt werden können, wie von HETTNER [8] gezeigt worden ist.

Die Theorie von SOMMERFELD setzt die Wirksamkeit eines ungestörten Coulomb-Feldes voraus, doch kann im gegebenen Falle — abhängig von der Elektronendichte — leicht entschieden werden, ob Dichtekorrekturen notwendig sind [8].

Es wird schließlich noch ein Vergleich zwischen der Bremsstrahlung und der Rekombinationsstrahlung eines Wasserstoffplasmas gleichförmiger Temperatur durchgeführt.

### 2. Die Bremsstrahlung eines Plasmas

Aus der gesamten Strahlungsleistung pro Frequenzeinheit nach SOMMERFELD

$$W_\nu = \left( \frac{\pi}{\sqrt{3}} g \right) \frac{32\pi}{3} \cdot \frac{Z^2 e^8}{m^2 c^3 v^2} \quad (1)$$

eines Elektrons der Geschwindigkeit  $v = w \cdot z$  ( $w = \sqrt{2kT/m}$ ) mit  $g$  als Gaunt-Faktor und mit  $Z$  als Ladung des bremsenden Kerns ergibt sich die gesamte Emis-

sion der Bremsstrahlung eines Plasmas der Temperatur  $T$  zu

$$4\pi \varepsilon_r^{(0)} = n_i n_e w \int z W_\nu F_0(z) dz;$$

$n_i$  ist die Dichte der Ionen,  $n_e$  die der Elektronen,

$$F_0(z) = \frac{4}{\sqrt{\pi}} z^2 e^{-z^2}$$

ist das Maxwell-Boltzmannsche Geschwindigkeitsverteilungsgesetz.

Nach Einsetzen von  $W_\nu$  ist wegen  $z^2 = E/kT$  und  $E = \frac{1}{2}mv^2$  zu beachten, daß Strahlung der Energie nur von einem Elektron emittiert werden kann, dem mindestens die Energie  $h\nu$  aufweist.

Es ist daher offenbar mit  $u = h\nu/kT$  als untere Grenze  $z_0$  im Integral in (2)  $z_0 = \sqrt{u}$  zu setzen, so daß sich schließlich aus (2) mit (1)

$$4\pi \varepsilon_r^{(0)} = \frac{32\pi}{3} \frac{Z^2 e^8}{m^2 c^3} \frac{n_i n_e}{w} \int_{\sqrt{u}}^{\infty} \left( \frac{\pi}{\sqrt{3}} g \right) \frac{1}{z} F_0(z) dz$$

ergibt mit

$$\frac{\pi}{\sqrt{3}} g(z, u) = L(z, u)$$

als Funktion der Elektronenenergie  $E$  des gebremsten Elektrons und der Frequenz  $\nu$  der Strahlung.

### 3. Die Funktion $L$

$L$  kann gemäß der Sommerfeldschen Theorie nach BERGER [9], HETTNER [8] und KUMMERER [6] als Funktion der beiden Größen  $a = Z/k a_0$  und  $a' = Z/k'$  dargestellt werden;  $k$  und  $k'$  sind hier die Wellenzahl des Elektrons vor und nach der Bremsung,  $a_0$  ist Bohrscher Radius.

Aus  $a$  ergibt sich die Energie  $U$  des einfallenden Elektrons in eV gemäß der Beziehung

$$U = \frac{Z^2}{a^2} \frac{\alpha^2 c^2}{2\varepsilon/m} \quad [\text{eV}]$$

mit  $\alpha = e^2/\hbar c$  als Feinstrukturkonstante;  $U\varepsilon = h\nu_0$  liefert die auftretende Grenzfrequenz  $\nu_0$  und diese mit  $\nu = \left(1 - \frac{a^2}{a'^2}\right) \nu_0$  die Frequenz  $\nu$ ; damit ist  $L_U(\nu)$  festgelegt.

J. M. BERGER [9] hat die Werte  $I = \frac{a^2}{\pi^2} L$  im Bereich der Anfangsenergien zwischen 0,4 und 730 eV veröffentlicht. Er hat darüber hinaus (mit der Univ.-Berechnungen des  $I$  bis zu  $U = 75770$  eV durchgeführt

\* Teilweise vorgetragen am 21. April 1960 auf der Gasentladungstagung in Bad Pyrmont.



die den vorliegenden Ergebnissen zugrunde liegen<sup>1</sup>. In Abb. 1 sind die Grenzen der Bergerschen Werte durch senkrechte Striche gekennzeichnet.

von  $\bar{g}$  auch unterhalb 1 liegen kann. Dies ist dadurch bedingt, daß  $L$  für  $\nu = \nu_0$  nach GUGGENBERGER für hohe Temperaturen gegen Null geht.

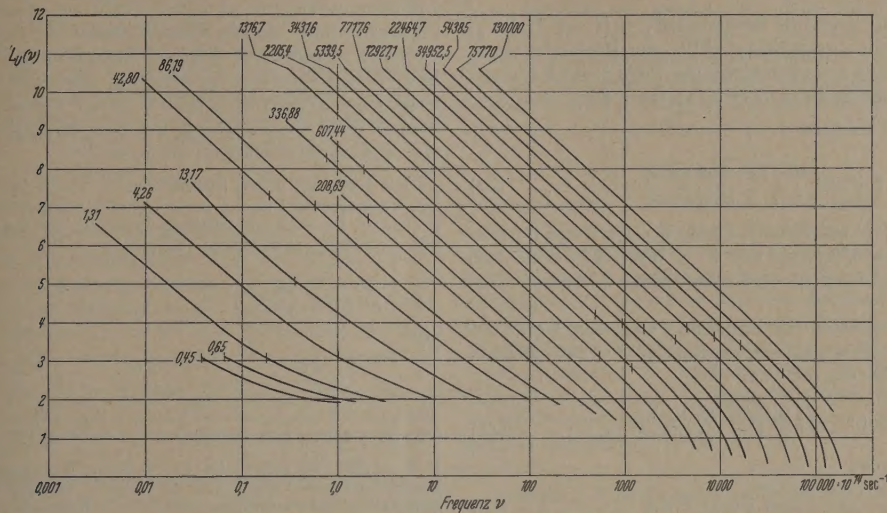


Abb. 1.  $L = \frac{\pi}{3} g$  als Funktion der Frequenz  $\nu$  und der Energie  $U$  (in eV)

Für die jeweilige Grenzfrequenz  $\nu_0$  ist  $L$  jeweils nach GUGGENBERGER [10] berechnet worden.

Die nach BERGER und GUGGENBERGER eingetragenen Werte können nun auch für die höchsten  $U$ -Werte nach der Seite niedrigerer Frequenzen nach KUMMERER [6] unter Beachtung der von ihm vorgeschriebenen Bedingungen so ergänzt werden, daß das so ausgefüllte Diagramm ausreicht, um eine Berechnung der  $g$ -Werte für Plasmen zwischen  $10^4$  °K und  $10^8$  °K zu ermöglichen.

Abb. 1 zeigt die Funktion  $L_U(\nu) = \frac{\pi}{3} g_U(\nu)$  für ein Wasserstoffplasma der Kernladungszahl 1 im einfach-logarithmischen Maßstab; jede der Kurven endet bei einer Grenzfrequenz  $\nu_0$ .

Von diesen Endpunkten ausgehend kann nun  $L/z$  als Funktion von  $z = \sqrt{U \epsilon / k T}$  gebildet, mit  $F_0(z)$  multipliziert und nach (4) von  $z_0 = \sqrt{u}$  bis  $\infty$  numerisch quadriert werden.

Es kann so ein Mittelwert  $\bar{g}(u)$  gemäß

$$\bar{g}(u) \int_{\sqrt{u}}^{\infty} \frac{\pi}{\sqrt{3}} \frac{4}{\sqrt{\pi}} z e^{-z^2} dz = \int_{\sqrt{u}}^{\infty} \frac{\pi}{\sqrt{3}} g(z, u) \frac{1}{z} F_0(z) dz \quad (7)$$

berechnet und damit die Emission  $4\pi \epsilon_\nu^{(0)}$  durch  $\bar{g}(u)$  ausgedrückt werden.

4. Emission, Absorption, Strahldichte und Leistungskonzentration der Bremsstrahlung

Abb. 2 zeigt den Mittelwert  $\bar{g}(u)$  mit  $T$  als Parameter für ein Wasserstoffplasma und läßt erkennen, daß für hohe Temperaturen und große  $u$  der Wert

BERGER [11] hat bereits  $\bar{g}$ -Werte für Wasserstoffplasmen zwischen  $6 \cdot 10^3$  °K und  $10^6$  °K für die Wellenlängen zwischen 500 und 10000 Å berechnet, GREENE [12] hat die  $\bar{g}$ -Werte nach der Elwertischen Näherung

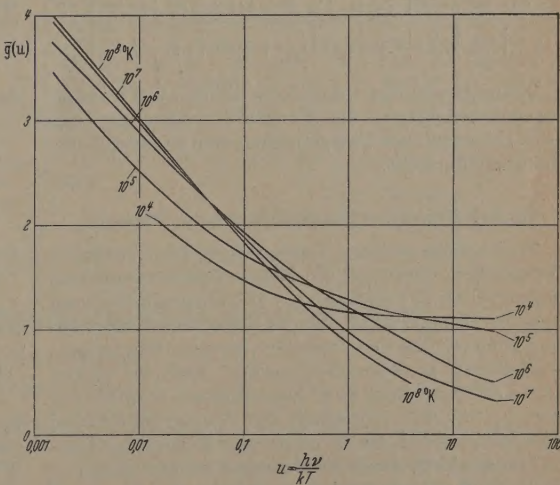


Abb. 2. Mittelwert  $\bar{g}$  in Abhängigkeit von  $u$  und  $T$

zwischen  $u=0,1$  und  $u=3$  bis zu den höchsten Temperaturen angeben.

Es ergibt sich nun nach (4) und (7)

$$4\pi \epsilon_\nu^{(0)} = \bar{g}(u) \left( \frac{64\pi}{3} \sqrt{\frac{\pi}{3}} \frac{Z^2 e^6}{m^2 c^3} \right) n_i n_e e^{-u}. \quad (8)$$

Aus  $\epsilon_\nu^{(0)} = \kappa_\nu^{(0)} E_{0\nu}$  mit  $E_{0\nu}$  als Strahldichte des schwarzen Strahlers folgt als Absorptionskoeffizient der Bremsstrahlung ( $\alpha$  Feinstrukturkonstante)

$$\kappa_\nu^{(0)} = \bar{g}(u) \left( \frac{4}{3\sqrt{3}} \frac{1}{\sqrt{\pi}} \frac{Z^2 e^4}{m^2} \alpha \right) \frac{n_i n_e}{w} \frac{1 - e^{-u}}{v^3} \quad (9)$$

<sup>1</sup> Der Verfasser möchte auch an dieser Stelle Herrn Dr. BERGER seinen herzlichsten Dank für die freundliche Überlassung dieser weitergehenden Werte sagen!



bzw.

$$\kappa_p^{(0)} = \bar{g}(u) \left( \frac{8}{3} \sqrt{\frac{\pi}{3}} \frac{Z^2 e^6 \hbar^2}{m^2 c} \right) \frac{1}{(kT)^3} \frac{n_i n_e}{w} \frac{1 - e^{-u}}{u^3}. \quad (9a)$$

Weiterhin liefert die Beziehung  $E_\lambda^{(0)} = (1 - e^{-\kappa_\lambda^{(0)} l}) E_{0\lambda}$  die Strahldichtevertellung  $E_\lambda^{(0)}$  der Bremsstrahlung eines Plasmas der geometrischen Tiefe  $l$ ; im Falle optisch dünner Schicht ( $\kappa_\lambda^{(0)} l \ll 1$ ) wird diese mit  $c_2 = \frac{c \hbar}{k} = 1,438 \text{ cm grad}$

$$E_\lambda^{(0)} = l \cdot \bar{g}(u) \left( \frac{16}{3} \sqrt{\frac{\pi}{3}} \frac{Z^2 e^6}{m^2 c^2} \right) \frac{n_i n_e}{\lambda^2} \cdot \frac{e^{-c_2/\lambda T}}{\lambda^2}. \quad (10)$$

Die in (10) auftretende Funktion  $u^2 e^{-u}$  hat ihr Maximum — unabhängig von  $T$  — bei  $u=2$ ; durch die Einwirkung des  $\bar{g}(u)$  wird dieses nicht wesentlich verschoben.

Die Integration der Emission  $4\pi\epsilon_p^{(0)}$  über  $\nu$  gibt die gesamte Leistungskonzentration  $S^*(0)$  der Bremsstrahlung (in  $\text{erg sec}^{-1}/\text{cm}^3$ ) zu

$$S^*(0) = \bar{g} \left( \frac{16}{3} \sqrt{\frac{\pi}{3}} \frac{Z^2 e^4}{m c^2} \alpha \right) w \cdot n_i n_e; \quad (11)$$

der Mittelwert

$$\bar{g} = \int_0^\infty \bar{g}(u) e^{-u} du \quad (12)$$

wird (wiederum für ein Wasserstoffplasma der Kernladungszahl  $Z=1$ ) in Tabelle 1 gegeben.

Tabelle 1.  $\bar{g}$  für ein Wasserstoffplasma als Funktion der Temperatur gemäß der Theorie von SOMMERFELD

$T$ [°K]	$10^4$	$4 \cdot 10^4$	$10^5$	$4 \cdot 10^5$	$10^6$	$4 \cdot 10^6$	$10^7$	$4 \cdot 10^7$	$10^8$
$\bar{g}$	1,30	1,38	1,43	1,44	1,40	1,29	1,21	1,16	1,15

Es zeigt sich durch Vergleich mit den von GREENE angegebenen Werten der Elwertschen Näherung, daß diese bei sehr hohen Temperaturen eine ausgezeichnete Näherung darstellt.

### 5. Zur Rekombinationsstrahlung eines Plasmas

In Plasmen geringen Ionisierungsgrades (niedriger Temperatur) überwiegt die Rekombinationsstrahlung gegenüber der Bremsstrahlung. Die Grenzkontinua angeregter Atomzustände, die die Rekombinationsstrahlung kühlerer Plasmen darstellen, können summarisch abschätzend so behandelt werden, daß die oberen Terme als hinreichend dicht liegend bis zu einem Grenzwert  $u_g = h\nu_g/kT$  (unterhalb der Ionisierungsgrenze) angesehen werden, die Summe dieser Rekombinationskontinua mithin durch ein Integral ersetzt wird [1]. Werden die Gaunt-Faktoren hierbei durchgehend gleich 1 gesetzt, ergibt sich so, daß die Ausdrücke  $4\pi\epsilon_p^{(0)}$ ,  $\kappa_p^{(0)}$  und — für optisch dünne Schicht —  $E_\lambda^{(0)}$  gemäß (8), (9) und (10) im Bereich  $u \leq u_g$  mit  $e^u$ , im Bereich  $u \geq u_g$  mit  $e^{u_g}$  multipliziert werden müssen, um die jeweils entsprechenden Ausdrücke für die gesamte kontinuierliche Strahlung (Rekombinationsstrahlung + Bremsstrahlung) zu erhalten [2]. Die Kernladung  $Z$  wird hierbei durch eine passend zu wählende wirksame Kernladung  $(Z+s)$  ersetzt [2], [13].

Die kontinuierliche Strahlung  $S_{\text{kont}}^*$  als Summe aus Rekombinations- und Bremsstrahlung ergibt sich nach dieser Betrachtungsweise in  $\text{erg sec}^{-1}/\text{cm}^3$  zu

$$S_{\text{kont}}^* = (1 + u_g) S^*(0). \quad (13)$$

Die hier skizzierte Betrachtungsweise empfiehlt sich auch bei der Behandlung kühlerer Plasmen geringer Ionisierungsgrades, für die  $h\nu_g$  klein gegen die Ionisierungsenergie ist [14]. Auch ein Wasserstoffplasma könnte als ein Plasma dieser Art angesehen werden; andererseits können Rekombinationsstrahlung und diskret-kontinuierlicher Absorptionskoeffizient eines Wasserstoffplasmas exakt berechnet werden, so daß ein Vergleich möglich ist. Dieser Vergleich wird im folgenden durchgeführt.

Die Emission durch Rekombination  $4\pi\epsilon_p^{(1)}$  pro  $\text{cm}^3$  und Frequenzintervall 1 in den  $n$ -ten Quantenzustand für Wasserstoff (bzw. für wasserstoffähnliche Systeme der Kernladungszahl  $Z$ ) beträgt nach CILLÉ [15], [16]

$$4\pi\epsilon_p^{(1)} = \left( 2u_1 \frac{\bar{g}_n}{n^3} e^{u_n} \right) \left( \frac{64\pi}{3} \sqrt{\frac{\pi}{3}} \frac{Z^2 e^6}{m^2 c^3} \right) \frac{n_i n_e}{w} e^{-u} \quad (1)$$

mit

$$u_1 = \frac{Z^2 \cdot R h c}{k T}, \quad u_n = \frac{Z^2 \cdot R h c}{n^2 k T}, \quad R = \frac{2\pi^2 e^4 m}{c h^3}$$

für  $u \geq u_n$  bzw.  $\nu \geq \text{Grenzfrequenz } \nu_n (= \frac{kT}{h} u_n)$ .

$R = 1,097 \cdot 10^8 [\text{cm}^{-1}]$  ist die Rydberg-Konstante,  $n$  die Hauptquantenzahl, die  $\bar{g}_n$  sind die (über die Maxwell-Funktion gemittelten) quantenmechanischen Gaunt-Faktoren nach MEZEL und PEKERS [17] für frei-gebundene Übergänge.  $u_1$  entspricht der durch  $kT$  dividierten Ionisierungsenergie (zwischen  $R_\infty$ ,  $R_H$ ,  $R_D$  usw. wird hier und im folgenden nicht unterschieden).

Die Integration von (14) über alle Frequenzen oberhalb liefert sofort die gesamte Strahlung  $S_n^*(1)$  durch Rekombination in den  $n$ -ten Quantenzustand, und die Summation über die  $S_n^*(1)$  ergibt schließlich die gesamte Strahlungsleistung durch Rekombination in sämtliche Quantenzustände  $n \geq (n' = 1, 2, \dots)$  in  $\text{erg sec}^{-1}/\text{cm}^3$

$$S^*(1) = \sum_{n=n'} S_n^*(1) \quad (1)$$

zu

$$S^*(1) = \bar{\gamma}(u') \left( \frac{16}{3} \sqrt{\frac{\pi}{3}} \frac{Z^2 e^4}{m c^2} \alpha \right) w \cdot n_i n_e \quad (1)$$

mit

$$\bar{\gamma}(u') = 2u_1 \sum_{n=n'} \frac{\bar{g}_n}{n^3} e^{u_n}. \quad (1)$$

Durch Vergleich von (16) mit (11) ist zu erkennen, daß  $\bar{\gamma}$  formal dem  $\bar{g}$  entspricht.

Der gesamte diskret-kontinuierliche Absorptionskoeffizient neutralen Wasserstoffs (bzw. wasserstoffähnlicher Systeme der Kernladungszahl  $Z$ ) ist in  $\text{cm}^{-1}$  [16]

$$\kappa_p^{(1)} = \bar{\gamma}(u') (u) (kT) \cdot \left( \frac{8\pi}{3} \sqrt{\frac{\pi}{3}} \frac{Z^2 e^4}{h^3} \alpha \right) e^{-u_1} \frac{1 - e^{-u}}{u^3} n_{0,1} \quad (1)$$

mit  $n_{0,1}$  als Zahl der neutralen (0-fach ionisierten) Wasserstoffatome pro  $\text{cm}^3$  im Grundzustand (im 1. Quantenzustand) und mit

$$\bar{\gamma}(u') (u) = 2u_1 \sum_{n=n'} \frac{\bar{g}_n}{n^3} e^{u_n}, \quad (1)$$

gültig jeweils für diejenigen Bereiche  $u$ , innerhalb der  $u \geq u_{n'}$  ist.

Die Summenbildung in (19) berücksichtigt die Überlagerung der Grenzkontinua im Sinne von (15);  $\bar{\gamma}(u)$  ist kontinuierlich von  $u$  abhängig derart, daß  $\bar{\gamma}$  an den Stellen  $u = u_{n'}$  Sprungstellen aufweist gemäß der diskontinuierlichen Absorption atomarer Systeme.

Wird  $n_{0,1}$  gemäß der Saha-Gleichung für Wasserstoff (Wichtungsfaktor = 1)

$$\frac{n_i n_e}{n_{0,1}} = \frac{(2\pi m k T)^{3/2}}{h^3} e^{-u_1}$$

ersetzt (unter Vernachlässigung der — vom jeweiligen abhängigen — Erniedrigung der Ionisierungsspannung),



ergibt sich als diskret-kontinuierlicher Absorptionskoeffizient

$$\kappa_{\nu}^{(1)} = \bar{\gamma}^{(n)}(u) \left( \frac{4}{3} \frac{1}{\sqrt{\pi}} \frac{Z^2 e^4}{m^2} \alpha \right) \frac{n_i n_e}{w} \frac{1 - e^{-u}}{u^3}, \quad (20)$$

ein Ausdruck, der gleichfalls dem für  $\kappa_{\nu}^{(0)}$  gemäß (9) vollkommen entspricht; an Stelle des  $\bar{\gamma}(u)$  in (9) erscheint hier  $\bar{\gamma}^{(n)}(u)$ . Damit sind auch sofort Emission  $4\pi \varepsilon_{\nu}^{(1)}$  entsprechend (8) und Strahllichte  $E_{\lambda}^{(1)}$  entsprechend (10) gegeben.

Durch Integration von  $4\pi \varepsilon_{\nu}^{(1)}$  über alle Frequenzen  $\nu \geq \nu_n$  ergibt sich wiederum  $S^{*(1)}$  gemäß (16) mit

$$\bar{\gamma}^{(n')} = \int_{u_n}^{\infty} \bar{\gamma}^{(n)}(u) e^{-u} du \quad (21)$$

entsprechend (12), identisch mit (17).

Für ein Wasserstoffplasma der Temperatur  $10^4$  °K ist  $\bar{\gamma}^{(2)} = 6,00$ ,  $\bar{g} = 1,30$ , während  $u_g$  in (13) den Wert 3,95 aufweist, wenn  $u_g = u_2$  genommen wird, mithin sämtliche oberen Terme bis zum Grundterm der Balmer-Serie als „hinreichend dicht liegend“ angesehen

Tabelle 2.  $\bar{\gamma}^{(1)}$  und  $\bar{\gamma}^{(2)}$  sowie  $\bar{\gamma}^{(2)}$  für ein Wasserstoffplasma als Funktion der Temperatur gemäß der Theorie von SOMMERFELD

Wellenlängen- bereich	T °K	10 <sup>5</sup>	10 <sup>6</sup>	10 <sup>7</sup>	10 <sup>8</sup>
	$\bar{\gamma}^{(1)}$	3,55	0,36	0,02	0,002
$\lambda \leq 912 \text{ \AA}$	$\bar{\gamma}^{(1)}$	14,9	0,41	0,02	0,002
$\lambda \leq 3647 \text{ \AA}$	$\bar{\gamma}^{(2)}$	0,88	0,06	0,00	0,000

werden. Es erscheint daher zweckmäßig, bei Anwendung von (13)  $S^{*(0)}$  mit Korrektur  $\bar{g}$  gemäß (11) anzusetzen und anschließend  $(Z + s)^2$  passend zu wählen.

Bei Änderung des Quadrats der Kernladung von 1 auf etwa 2 [2] ändern sich die  $\bar{g}$ - und  $\bar{\gamma}$ -Werte bei niedriger Temperatur nur geringfügig, wie eine Berechnung im Hinblick auf eine untersuchte Xenon-Hochdruckentladung von 7700° K [14] gezeigt hat.

Im Falle eines Wasserstoffplasmas dieser Temperatur müßte auch noch der Beitrag des  $H^-$ -Ions zum Kontinuum berücksichtigt werden [16], wie von MASTRUP [18] durchgeführt. Dagegen müßten in Wasserstoffplasmen von  $10^5$  und  $10^6$  °K die Elektronendichten  $\approx 5 \cdot 10^{23}$  bzw.  $1 \cdot 10^{26} \text{ cm}^{-3}$  betragen, damit  $\kappa_{\nu}(H^-)$  mit  $\kappa_{\nu}^{(0)} + \kappa_{\nu}^{(1)}$  gemäß (9) und (20) konkurrieren könnte!

Es erscheint noch von Interesse, den Einfluß der Bremsung der Elektronen mit dem der Rekombination innerhalb eines reinen Wasserstoffplasmas bei hohen Temperaturen zu vergleichen. Die Tabelle 2 zeigt die Werte  $\bar{\gamma}^{(1)}$  und  $\bar{\gamma}^{(2)}$  sowie  $\bar{\gamma}^{(2)}$  (mit den zugehörigen Wellenlängenbereichen). Der Vergleich dieser Werte mit Tabelle 1 bzw. Abb. 2 läßt unmittelbar das Verhältnis beider Einflüsse als Funktion der Temperatur erkennen.

### Zusammenfassung

Es wird der Einfluß des Gaunt-Faktors auf Emission, Absorption, Strahllichtverteilung und Leistungskonzentration der Bremsstrahlung eines Wasserstoffplasmas gemäß der exakten Theorie von SOMMERFELD über weite Frequenzbereiche dargestellt. Die numerischen Angaben fußen auf Rechnungen und Entwicklungen von BERGER, HETTNER, KUMMERER und GUGGENBERGER. Es wird weiterhin die Rekombinationsstrahlung eines Wasserstoffplasmas im Verhältnis zur Bremsstrahlung in Abhängigkeit von der Temperatur betrachtet.

**Literatur:** [1] UNSÖLD, A.: Ann. Phys. (5) **33**, 607 (1933). — [2] MAECKER, H., u. T. PETERS: Z. Physik **139**, 448 (1954). — [3] GAUNT, J. A.: Proc. Roy. Soc. Lond. A **126**, 654 (1930). — [4] MAUE, A.-W.: Ann. Phys. (5) **13**, 161 (1932). — [5] SOMMERFELD, A.: Atombau und Spektrallinien, Bd. 2, Kap. 7, Braunschweig 1944. — [6] KUMMERER, K.: Z. Physik **147**, 373 (1957). — [7] KOCH, H. W., and J. W. MOTZ: Rev. Mod. Phys. **31**, 920 (1959). — [8] HETTNER, G.: Z. Physik **150**, 182 (1958). — [9] BERGER, J. M.: Phys. Rev. **105**, 35 (1957). — [10] GUGGENBERGER, TH.: Z. Physik **149**, 523 (1957). — [11] BERGER, J. M.: Astrophys. J. **124**, 550 (1956). — [12] GREENE, J.: Astrophys. J. **130**, 693 (1959). — [13] GÖING, W., H. MEIER u. H. MEINEN: Z. Physik **140**, 376 (1955). — [14] SCHIRMER, H.: Z. angew. Phys. **11**, 357 (1959). — [15] CILLIÉ, G.: Monthly Notices Roy. Astron. Soc. **92**, 820 (1932). — [16] UNSÖLD, A.: Physik der Sternatmosphären, Berlin-Göttingen-Heidelberg 1955. — [17] MENZEL, D. H., and C. L. PEKERIS: Monthly Notices Roy. Astron. Soc. **96**, 77 (1935). — [18] MASTRUP, F.: J. Opt. Soc. Amer. **50**, 32 (1960).

Dr. H. SCHIRMER  
Osrarn-Studiengesellschaft Berlin

## Zur Erzeugung starker Molekularstrahlen im Hochvakuum mit Düsen\*

Von GERHARD BECKER

Mit 8 Textabbildungen

(Eingegangen am 16. August 1960)

### 1. Einleitung

Wenn die mittlere freie Weglänge der Gasmoleküle in einem „Ofen“ groß gegen die Dimensionen einer dünnwandigen Ofenöffnung ist, also im sogenannten „Knudsen-Gebiet“, treten die Moleküle, wie mehrfach gezeigt worden ist [1], [2], [3], aus einer derartigen „Lochkanone“ mit der von KNUDSEN angegebenen Kosinus-Intensitätsverteilung aus. Da für die Herstellung von Molekularstrahlen immer nur ein kleiner Winkelbereich der Gesamtstrahlung ausgenutzt werden kann, muß der größte Teil der Moleküle durch Kondensation oder durch leistungsfähige Pumpen beseitigt werden.

\* Mitteilung aus der Physikalisch-Technischen Bundesanstalt.

Die Richtwirkung von Kanälen wurde zuerst von MAYER [4] beobachtet und dann von CLAUSING [5] und anderen berechnet. RAMSEY [6] stellte die erhaltenen Ergebnisse zusammen. Man drückt die Richtwirkung durch eine Größe  $\kappa$  aus, die angibt, um welchen Faktor die Strahlstärke in Achsenrichtung der Kanäle größer ist als bei einer Lochkanone (normal zur Lochebene), wenn die Gesamtzahl der ins Vakuum fliegenden Moleküle in beiden Fällen gleich ist. Mit Hilfe von Kanälen kann man also mit  $1/\kappa$  der bei Lochkanonen benötigten Pumpleistung auskommen und verbraucht außerdem zur Strahlerzeugung entsprechend kleinere Substanzmengen.

Bei der Berechnung der Richtwirkung von Kanälen wird davon ausgegangen, daß die Moleküle nach einem







## 2.2 Der Durchfluß

Der  $\text{NH}_3$ -Durchfluß wurde aus der Druckabnahme in einem Volumen  $V$  mit dem Ausströmungsverfahren nach der Beziehung

$$G = V \frac{dp_V}{dt} \quad (1)$$

bestimmt. Umgerechnet auf die Anzahl der ausströmenden Moleküle  $n_G$  ergibt sich

$$\frac{dn_G}{dt} = \dot{n}_G = G \frac{N_A}{RT} \quad (2)$$

$N_A$  Avogadro-Konstante,  $R$  Gaskonstante,  $T$  thermodynamische Temperatur).

Die Durchflußbestimmung nach der Ausströmungsmethode ist etwas umständlich, auch nicht sehr genau und zur Bestimmung sehr kleiner Durchflüsse nicht geeignet, weil die Desorption von der Gefäßwand und von den Innenwänden der Düsen das Ergebnis verfälscht. Praktisch wurde zumeist  $\Delta p_M$  als Funktion der Gleichgewichtsdrucke  $p_1$  und  $p_2$  von Kammer 1 und 2 gemessen. Da sich die Saugleistungen in beiden Kammern als praktisch gleich erweisen, ist

$$G = S \Delta p_G. \quad (3)$$

ist die in der Kammer 1 bzw. 2 wirksame Saugleistung der Pumpen  $P$ , und  $\Delta p_G$  ist die Summe der durch das Einströmen des Ammoniaks hervorgerufenen Druckerhöhungen  $\Delta p_1$  und  $\Delta p_2$  in den Kammern 1 bzw. 2.  $\Delta p_2$  betrug je nach Anordnung 3 bis 10% von  $\Delta p_1$ .

Im Bereich  $\Delta p_G = 1 \cdot 10^{-5}$  Torr bis  $\Delta p_G = 3 \cdot 10^{-4}$  Torr war der mit Gl. (1) gemessene Durchfluß im Rahmen der Meßgenauigkeit proportional zu  $\Delta p_G$ . Diese Unabhängigkeit der Saugleistung vom Druck ist aufgrund der angegebenen Pumpeneigenschaften und besonders auch wegen der linearisierenden Wirkung des vorgeschalteten Strömungswiderstandes (z.B. Baffle) zu erwarten. Die mit der Ausströmungsmethode gemäß Gl. (1) und (3) gemessene Saugleistung von 330 l/s blieb während der länger dauernden Untersuchungen auch zeitlich sehr gut konstant, wie aus Wiederholungen von Messungen geschlossen werden konnte.

Für die Strahlmessung im Bereich  $\Delta p_G = 10^{-7}$  Torr bis  $\Delta p_G = 10^{-5}$  Torr wurde versuchsweise ebenfalls die Proportionalität zwischen  $G$  und  $\Delta p_G$  angenommen, und die Messungen an Lochkanonen zeigen, daß man hierzu im Rahmen der erreichten Meßgenauigkeit berechtigt ist.

Zur Untersuchung der Strahlstärken bei sehr großen Durchflüssen mit Hilfe der Ausfrierfalle  $AF$  (Abb. 1) wurde auf die Ausströmungsmethode zurückgegriffen. Diesen Durchflüssen würden ohne Ausfrierfalle  $\Delta p_G$ -Werte bis  $3 \cdot 10^{-3}$  Torr entsprechen. Der Durchfluß wurde also insgesamt um  $4\frac{1}{2}$  Zehnerpotenzen variiert.

## 2.3 Die Richtwirkung

Die praktisch wirksame Richtwirkung einer strahlzeugenden Kanone soll durch eine Größe „effektiver Wert“  $\kappa_{\text{eff}}$  beschrieben werden, der definiert ist

$$\kappa_{\text{eff}} = \frac{\text{Strahlstärke der Strahlkanone}}{\text{Strahlstärke einer Lochkanone}} \quad (4)$$

bezogen auf gleichen Durchfluß  $G$  in beiden Kanonen und gemessen in Achsenrichtung der Kanäle bzw. normal zur Lochebene unter Verwendung eines so kleinen Auffängers, daß die Strahlintensität über die Auffängerfläche praktisch konstant ist<sup>1</sup>. Gemessen wird  $\kappa_{\text{eff}}$  über die entsprechenden Druckänderungen  $\Delta p_M$  in der Meßkammer

$$\kappa_{\text{eff}} = \frac{\Delta p_M (\text{Strahlkanone})}{\Delta p_M (\text{Lochkanone})}. \quad (5)$$

## 2.4 Bestimmung der Strahlstärke

Solange die Kosinus-Intensitätsverteilung für Lochkanonen ( $LK$ ) gilt, folgt für die Anzahl der auf den Auffänger der Fläche  $A$  fliegenden Moleküle  $n_A$  die Beziehung

$$\dot{n}_A = \dot{n}_G \frac{A}{\pi L^2}. \quad (6)$$

$L$  ist die Entfernung von der Kanone zum Auffänger. Durch Zusammenfassung von Gl. (2), (3) und (6) erhält man die Strahldichte

$$j = \frac{\dot{n}_A}{A} = \frac{S}{\pi L^2} \frac{N_A}{RT} \left( \frac{\Delta p_G}{\Delta p_M} \right)_{LK} \Delta p_M. \quad (7)$$

$S$  ist von der Ausströmungsmessung her bekannt, und  $(\Delta p_G / \Delta p_M)_{LK}$  muß aus einer Messung an einer Lochkanone bestimmt werden. Man ist dann in der Lage,  $\dot{n}_A$  oder  $j$  für jedes gemessene  $\Delta p_M$  irgendeiner Düse anzugeben.

## 3. Meßergebnisse

### 3.1 Vergleich einer Düsenkanone mit einer Lochkanone

Abb. 2 zeigt die Ergebnisse einer ohne Ausfrierfalle vorgenommenen Messung von  $\Delta p_M$  und  $j$  einer Düsenkanone ( $K6$ ) mit sehr feinen Kanälen (obere Kurve), deren Dimensionierung in Abb. 3 angegeben ist, und von  $\Delta p_G$  und  $j$  einer Lochkanone (untere Kurve) mit einer Blende von  $26 \text{ mm} \times 0,2 \text{ mm}$  in Abhängigkeit von der durch die Gaseinströmung hervorgerufenen Druckerhöhung  $\Delta p_G$  bzw. von  $\dot{n}_G$ .

Die in Abb. 2 erkennbare verhältnismäßig kleine Streuung der Meßwerte ist für sämtliche ausgeführten Messungen charakteristisch.  $\Delta p_M$  der Lochkanone ist in einem weiten Bereich zu  $\Delta p_G$  proportional und bestätigt damit, daß auch für kleine  $\Delta p_G$  Proportionalität zum Durchfluß besteht. Bemerkenswert ist die auch für alle weiteren Messungen charakteristische Tatsache, daß  $\Delta p_M$  als Funktion von  $\Delta p_G$  bzw. vom Durchfluß im doppelt logarithmischen Maßstab in einem weiten Bereich durch eine Gerade dargestellt werden kann, deren Neigung  $k$  in diesem Fall 0,667 beträgt. Bei höheren Werten von  $\Delta p_G$  weichen die Kurven vom geradlinigen Verlauf ab, was unschwer durch die Extinktionswirkung von Molekülzusammenstößen in den Kammern 1 und 2 zu deuten ist.

Wenn man Kanone 6 weiter zurücksetzt ( $d = 86 \text{ mm}$ ), erhält man Kurve  $a$  in Abb. 4, deren Neigung  $k = 0,663$  mit der von Abb. 2 sehr gut übereinstimmt, während die Extinktion sehr viel stärker ist.

<sup>1</sup>  $\kappa_{\text{eff}}$  könnte außer vom Durchfluß  $G$  auch von der Größe der Blende  $B$  abhängen, da die von KRATZENSTEIN nachgewiesene Wolke vor der Ofenöffnung mit zunehmendem Durchfluß wächst. Die Wolke stellt selbst eine Strahlungsquelle dar, die je nach Größe der Blende  $B$  verschieden stark abgeschattet wird.



Tabelle. Abmessungen von Düsenkanonen

Nr.	Bauart	Material	$l$ mm	$b$ mm	$h$ mm	$F$ mm <sup>2</sup>	$\delta$ mm	Zahl der Kanäle	Zahl der Schichten	$\tau$	$\kappa$
1	B	Edelstahl	120	2,0	0,50	$1,01 \times 26$		20	2	0,80	78
2	A	Nickel	10	0,112	0,052	$1 \times 26$	0,01	3200	14	0,71	84
3	A	Nickel	20	0,27	0,123	$1 \times 26$	0,02	580	6	0,69	71
4	B	Messing	120	0,33	0,50	$1 \times 26$		104	2	0,65	206
5	A	Nickel	10	0,122	0,020	$1 \times 26$	0,005	7000	33	0,66	160
6	A	Nickel	10	0,122	0,020	$0,5 \times 26$	0,005	3500	17	0,66	160

( $\tau$  Transparenz = [Summe der Kanalquerschnitte];  $F$ ; die anderen Bezeichnungen beziehen sich auf Abb. 3 und 6.)

Kurve  $b$  entspricht der Kurve für die Lochkanone (Abb. 2), deren gradliniger verlängerter Teil auf den größeren Abstand  $L$  zwischen Kanone und Auffänger

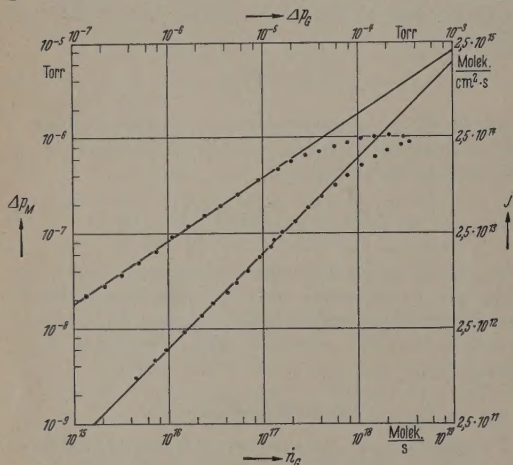


Abb. 2. Durch den Strahl bewirkte Druckerhöhung  $\Delta p_M$  in der Meßkammer bzw. Strahldichte  $j$  am Auffänger bei Verwendung von Kanone K6 (obere Kurve) und von einer Lochkanone LK (untere Kurve) in Abhängigkeit vom Durchfluß  $\dot{n}_G$  bzw. der entsprechenden Druckerhöhung  $\Delta p_G$  in Kammer 1 und 2. Abstand Kanone-Blende  $d = 10$  mm

umgerechnet worden ist. Die Kurven  $c$  und  $d$  wurden für Kanone 6 bzw. für die Lochkanone nach Einbau der Ausfrierfalle in Kammer 1 erhalten. Es liegt nahe,

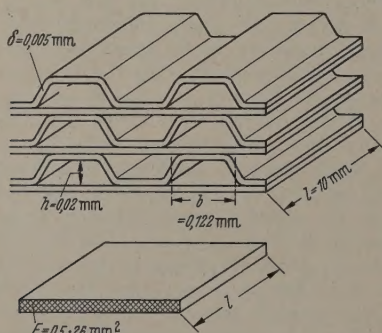


Abb. 3. Düsenkanone Bauart A. Die Maße gelten für Kanone 6.  $F$  Strahlquerschnitt

die Kurven  $a$  und  $c$  durch Kurve  $e$  zu verbinden, die das nahezu extinktionsfreie Verhalten im Zwischengebiet wiedergeben dürfte.

Als wesentliches Ergebnis dieser Versuche ist festzustellen, daß die Strahldichte  $j$  der Düsenkanone in einem sehr weiten Durchflußbereich durch eine einfache Beziehung

$$j \sim \dot{n}_G^k \quad (8)$$

mit  $k \approx 2/3$  beschrieben wird, die bis annähernd der Durchflußstärke gültig ist, bei welcher sich Strahldichten von Düsen- und Lochkanone nicht mehr unterscheiden.

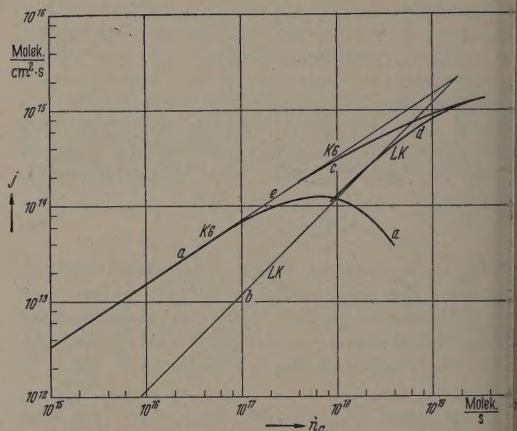


Abb. 4. Strahldichte  $j$  für Düsenkanone K6 und für eine Lochkanone LK in Abhängigkeit vom Durchfluß. Abstand Kanone-Blende  $d = 86$  mm.  $a$  Gemessen ohne Ausfrierfalle,  $c$  und  $d$  mit Ausfrierfalle,  $e$  graphisch interpoliert.  $b$  Entspricht der Kurve LK in Abb. 2, umgerechnet auf die geänderte Strahllänge  $L$

Für den Richtwert  $\kappa_{\text{eff}}$  ergibt sich aus Abb. 4 der in Abb. 5 gezeigte Verlauf, der durch die Beziehung

$$\kappa_{\text{eff}} \sim \dot{n}_G^{k-1}$$

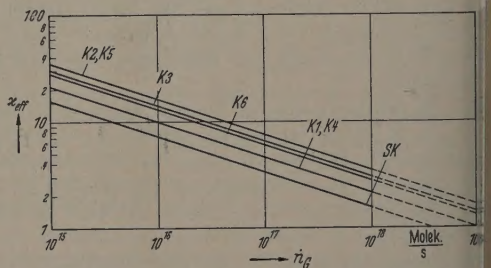


Abb. 5. Effektiver Richtwert  $\kappa_{\text{eff}}$  der Düsenkanonen K1 bis K6 und von Spaltkanonen SK in Abhängigkeit vom Durchfluß. Im  $\dot{n}_G$ -Bereich bis  $10^{18}$  Molek./s ist die Extinktion nicht vernachlässigbar (s. Abb. 4)

dargestellt wird. Der mit einer Formel für rechteckige Kanäle [6] berechnete theoretische  $\kappa$ -Wert für Kanone 6 liegt etwa bei 160, wird also bei größeren Durchflüssen auch nicht annähernd erreicht.

### 3.2 Die Richtwirkung von Düsenkanonen verschiedener Dimensionierung

In der in Abschnitt 3.1 dargestellten Weise wurden die Richtwirkungen von mehreren verschieden konstruierten Düsenkanonen gemessen, deren Dimen-



onierung aus der Tabelle in Verbindung mit den Abb. 2 und 6 entnommen werden kann. Bei diesen Messungen, deren Ergebnisse in Abb. 5 wiedergegeben sind, wurde nicht mit Ausfrierfalle gearbeitet. Der Exponent  $k$  war für alle fünf Düsenkanonen nahe bei 2/3.

Es ist auffällig, daß sich die Richtwirkungen der Kanonen in Abhängigkeit vom Durchfluß alle ähn-

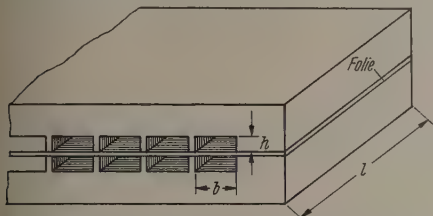


Abb. 6. Düsenkanone Bauart B mit geschliffenen Kanälen

lich verhalten und daß die Strahlstärken sehr viel enger voneinander abweichen, als man aufgrund der großen Unterschiede der Kanäle erwarten sollte. Nach diesem Ergebnis erscheint es nicht aussichtsreich, erheblich bessere Richtwirkungen durch die Konstruktion von Kanonen mit noch engeren Kanälen zu erzielen. Die Überlegenheit von Düsenkanonen über Lochkanonen kommt jedenfalls in einem Durchflußbereich zur Geltung, der für die Herstellung besonders starker Strahlen weniger wichtig ist.

### 3.3 Die Richtwirkung von langen Spaltkanonen

Die effektiven Richtwerte von „Spaltkanonen“, deren Schlitzze gemäß Abb. 7 mit zwei planparallelen Messingplatten und Distanzstreifen hergestellt sind,

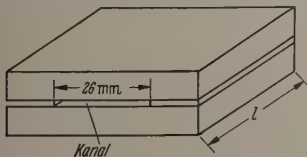


Abb. 7. Bauart der Spaltkanonen

wurden für sieben verschiedene Schlitzhöhen  $h$  von 0,2 mm bis 1 mm bestimmt. Das Verhalten aller Spaltkanonen war sehr ähnlich und läßt sich ebenfalls durch (8) und (9) unter Verwendung der Exponenten  $k = 0,61$  bis  $k = 0,68$  beschreiben. Die Strahlstärken der Kanonen unterschieden sich im Durchflußbereich  $10^{15}$ – $10^{18}$  Molek./s um höchstens 15% voneinander. Die Länge  $l$  der Schlitzkanäle betrug in jedem Falle mindestens das 200fache der Schlitzhöhe  $h$ . Kurve SK in Abb. 5 gibt das mittlere Verhalten aller Spaltkanonen wieder.

## 4. Diskussion der Meßergebnisse

### 4.1 Die wirksame Kanallänge

Die annähernde Unabhängigkeit der Richtwirkung von Spaltkanonen großer Länge von der Schlitzhöhe  $h$  ist physikalisch so zu verstehen, daß mit zunehmender Schlitzhöhe auch das Knudsen-Gebiet entsprechend größer wird, so daß sich das für die Richtwirkung maßgebliche Verhältnis der wirksamen Kanallänge  $l_{\text{eff}}$

zur Kanalhöhe  $h$  bei konstantem Durchfluß nur wenig ändert.

Zur Veranschaulichung des für das Verständnis der Richtwirkung von Kanälen sehr nützlichen Begriffes der wirksamen Kanallänge  $l_{\text{eff}}$  ist in Abb. 8 die gemessene Richtwirkung einer Spaltkanone für drei verschiedene Kanallängen wiedergegeben. Sobald mit zunehmendem Durchfluß  $l_{\text{eff}}$  kleiner als die geometrische Kanallänge  $l$  wird, nimmt die Richtwirkung ab und wird dann durch (9) beschrieben. Bei genügend kleinen Durchflüssen geht der effektive Richtwert  $\kappa_{\text{eff}}$  in den theoretischen  $\kappa$ -Wert über.

Die vorgelegten Ergebnisse legen nahe, die Abnahme der Richtwirkung mit zunehmendem Durchfluß im Gültigkeitsbereich der Beziehung (9) mit der

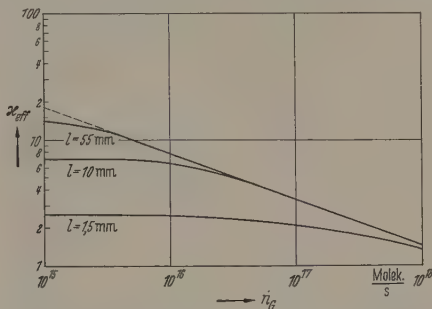


Abb. 8. Der effektive Richtwert  $\kappa_{\text{eff}}$  von drei Spaltkanonen mit Spaltbreite  $b = 26$  mm, Spalthöhe  $h = 0,5$  mm und verschiedenen Spaltlängen  $l$

Abnahme der wirksamen Kanallänge  $l_{\text{eff}}$  zu begründen, nicht aber mit der Extinktionswirkung einer Wolke außerhalb der Kanäle oder, anders ausgedrückt, mit Zusammenstößen im Strahl. Zur Abschätzung von  $l_{\text{eff}}$  kann man die bei kleinen Ofendruck für das theoretische  $\kappa$  geltenden Formeln nach  $l$  auflösen und gemessene effektive Richtwerte  $\kappa_{\text{eff}}$  einsetzen. Im Falle der Kanäle von Kanone 5 erhält man z. B. mit  $\kappa_{\text{eff}} = 3$  eine wirksame Kanallänge von nur 0,2 mm.

Für Kanäle, deren Länge  $l$  groß gegen die beiden anderen Dimensionen ist, geben die theoretischen  $\kappa$ -Formeln Proportionalität zwischen  $\kappa$  und  $l$  an. Hieraus folgt mit (9), daß dann

$$l_{\text{eff}} \sim \dot{n}_G^{k-1} \approx \frac{1}{\sqrt{\dot{n}_G}} \quad (10)$$

ist.

Die Wirkung der Extinktion innerhalb des Strahles oder in einer Wolke zeigt sich durch die Abweichungen von der Beziehung (8), wie sie in Abb. 4 für größere Durchflüsse erkennbar sind. Da der bandförmige Strahl bei dieser Messung von der Ausfrierfalle umgeben war, dürfte die Extinktion in erster Linie nicht vom Kammergas, sondern vom Strahl selbst hervorgerufen sein.

### 4.2 Zusammengesetzte Kanonen

Im Gültigkeitsbereich von (9) ergibt sich für den effektiven Richtwert  $\kappa_{\text{eff},m}$  einer aus  $m$  gleichen Einzelkanonen zusammengesetzten Kanone

$$\kappa_{\text{eff},m} = \kappa_{\text{eff},1} m^{1-k}. \quad (11)$$

Hierbei ist  $\kappa_{\text{eff},1}$  der Richtwert einer Einzelkanone beim Durchfluß  $\dot{n}_G$  und  $\kappa_{\text{eff},m}$  der einer zusammengesetzten Kanone beim gleichen Durchfluß. Durch



Vergrößerung des Strahlquerschnittes  $F$  läßt sich die Richtwirkung also nur verhältnismäßig wenig steigern. Gl. (11) wird durch die in Abb. 5 gezeigten Meßergebnisse für Kanone 6 und die doppelt so große Kanone 5 bestätigt.

Mit Hilfe von Gl. (11) und dem aus Abb. 5 zu entnehmenden Richtwert einer Spaltkanone lassen sich die Richtwerte von zusammengesetzten Spaltkanonen berechnen, die im Prinzip den Düsenkanonen  $K2$ ,  $K3$ ,  $K5$  und  $K6$  der Bauart  $A$  entsprechen, nachdem diesen die gewellten Folien entnommen wurden. Es stellt sich heraus, daß der Richtwert von  $K3$  genau und der von  $K2$  ungefähr mit  $\kappa_{\text{eff},m}$  der zusammengesetzten Spaltkanonen übereinstimmt, während die Richtwerte von  $K5$  und  $K6$  nur etwa  $2/3$  von  $\kappa_{\text{eff},m}$  erreichen. Dieses sehr wichtige Ergebnis besagt, daß durch die gewellten Folien in bezug auf die Richtwirkung nicht nur kein Vorteil entsteht, sondern bei besonders kleinen Schichthöhen sogar ein Nachteil. Auch bei den Kanonen  $K1$  und  $K4$  der Bauart  $B$  ergibt sich durch die Aufteilung der beiden Schichten in Kanäle kein Vorteil; denn die Richtwerte der beiden Kanonen sind fast gleich und entsprechen dem Richtwert einer zweischichtigen Spaltkanone.

### Zusammenfassung

Die Intensitäten von Ammoniak-Molekularstrahlen aus Düsenkanonen verschiedener Dimensionierung und aus schlitzförmigen Spaltkanonen wurden in Abhängigkeit von dem Durchfluß  $\dot{n}_G$  im Bereich von  $10^{15}$  bis  $4 \cdot 10^{18}$  und zum Teil bis  $3,6 \cdot 10^{19}$  Molek./s gemessen und die Richtwirkungen im Vergleich zu Lochkanonen bestimmt. Wenn die freie Weglänge der Moleküle klein gegen die Kanallänge ist, sind in einem weiten Durchflußbereich die Strahldichten  $j \sim \dot{n}_G^k$  und die effektiven Richtwerte  $\kappa_{\text{eff}} \sim \dot{n}_G^{k-1}$  mit

$k \approx 2/3^1$ . Bei Durchflüssen von  $10^{18}$  Molek./s liegen effektiven Richtwerte der untersuchten Düsenkanonen bei 3 und die der Spaltkanonen bei 1,5. Zur Untersuchung des Verhaltens der Kanäle wird der Begriff wirksamen Kanallänge  $l_{\text{eff}}$  eingeführt.

Die Ergebnisse zeigen, daß es zur Erzeugung einer möglichst großen Richtwirkung von Kanonen, die wirksame Länge  $l_{\text{eff}}$  klein gegen die geometrische Länge ist, nicht darauf ankommt, einen gegen die Kanonenquerschnitt in möglichst viele Kanäle, sondern in viele Spalte zu unterteilen. Jeder in Abhängigkeit der Richtung genügend lange Spalt, dessen Höhe  $h$  klein gegen seine Breite ist, hat mindestens die Richtwirkung von so viel Kanälen vom Durchmesser  $h$ , wie in einem einlagig Platz finden.

**Literatur:** [1] MAYER, H.: Z. Physik **52**, 235 (1929). [2] ZABEL, R. M.: Phys. Rev. **42**, 218 (1932). — [3] ROHN, Z. Physik **126**, 20 (1949). — [4] MAYER, H.: Z. Physik **66**, 471 (1930). — [5] CLAUSING, P.: Z. Physik **66**, 471 (1930). [6] RAMSEY, N. F.: Molecular Beams. Oxford 1956. [7] ZACHARIAS, J. R., and R. D. HAUN jr.: Quart. Prog. Res. Lab. of Electronics, M.I.T., Okt. 1954. — [8] GORDON, J. P., H. J. ZEIGER and C. H. TOWNES: Phys. Rev. **99**, (1955). — [9] MITCHELL, A. M. J., K. G. ROOTS and G. LIPS: Electronic Engng. **32**, 136 (1960). — [10] MINTEN u. O. OSBERGHAUS: Z. Physik **150**, 74 (1957). — [11] BONOMI, J., J. DE PRINS, J. HERRMANN u. P. KARTASCH: Helv. phys. Acta **31**, 285 (1958). — [12] GÜNTHER, K. Z. angew. Phys. **9**, 550 (1957). — [13] KRATZENSTEIN, Z. Physik **93**, 279 (1935). — [14] GORDMAINE, J. A., and WANG: J. appl. Phys. **31**, 463 (1960).

Dr. rer. nat. GERHARD BECKER, Braunschweig  
Physikalisch-Technische Bundesanstalt.

<sup>1</sup> Anmerkung in der Korrektur. In einer kürzlich veröffentlichten Arbeit [14] haben GORDMAINE und WANG experimentell (bei Messungen am  $\text{CO}_2$ ) den Exponenten  $k = 1/2$  gefunden und hierfür auch eine theoretische Begründung hergeleitet. Eine Diskussion dieser Arbeit im Zusammenhang mit den vorgelegten experimentellen Ergebnissen soll an anderer Stelle erfolgen.

## Die Abweichungen vom lichtelektrischen Proportionalitätsgesetz bei gasgefüllten Photozellen im Vorstrom- und im anomalen Glimmgebiet

VON WERNER KLUGE und ARNO SCHULZ

Mit 13 Textabbildungen

(Eingegangen am 11. Juli 1960)

### Einleitung und Aufgabenstellung

Bei der Heranziehung der Alkali-Photozelle als objektives Photometer für wissenschaftliche Zwecke bevorzugt man im allgemeinen die Vakuumzelle [2], [3]. Gegen die Verwendung gasgefüllter Zellen bestehen — zum Teil mit Recht — Bedenken. Man vermutet hier störende Abweichungen vom Proportionalitätsgesetz, für welche — wie ein Einblick in die Fachliteratur lehrt — nach Größe und Richtung oftmals einander widersprechende Angaben gemacht werden. In der vorliegenden Arbeit wird gezeigt, daß diese Abweichungen — sofern fehlerfrei konstruierte Photozellen und vor allem auch stabile Kathoden vorliegen — gesetzmäßig ablaufen und reproduzierbar sind.

Sie ergeben sich zwanglos aus den Wurzelgesetzen, welche ROGOWSKI und Fucks bei der Untersuchung der Vorströme an Entladungsstrecken mit Nickel-Kathoden schon im Jahre 1932 aufgestellt haben. Die

Alkalizelle ist demgegenüber nur eine quantitativ abgewandelte Versuchsanordnung, indem die Kathode schon auf sichtbares Licht reagiert und der Vorstrom im verdünnten Edelgas fließt.

Über das Ausmaß der bei gasgefüllten Photozellen erzielbaren inneren Verstärkung sind die Angaben der Literatur auch heute noch recht unsicher und zum Teil sogar irreführend. Wir können zeigen, daß die Verstärkungsfaktor von den Beschaltungsbedingungen abhängt und dabei theoretisch alle Werte zwischen 0 und  $\infty$  annehmen kann.

Außerordentlich verbreitet ist auch heute, trotz mancher Veröffentlichung zu dieser Frage, noch die Meinung, daß eine gasgefüllte Photozelle nach der Ladung der selbständigen Glimmentladung als so nicht mehr verwendungs- und funktionsfähig sei. Entladungsstrom lasse sich durch Licht nicht steuern.



Dieser Vorstellung ist der eine von uns [1] bereits im Jahre 1934 entgegengetreten. Sie läßt sich schon graphisch (vgl. Abb. 6) an Hand der in der Gasentladungsphysik bekannten Gesetze der Glimmentladung verdeutlichen. Bei der Durchführung der experimentellen Beweisführung ist allerdings unerlässlich, daß die Photokathode stabil ist, d.h. neben der heute erwarteten hohen Quantenausbeute eine gegen den Einstrom positiver Ionen unveränderte physikalisch-chemische Struktur beibehält. Diese Bedingung läßt sich erfüllen, wenn man die Kathode nach hierfür geeigneten Verfahren herstellt.

### Theoretische Grundlagen und Versuchsdurchführung

Legt man an die Elektroden einer „gasgefüllten“ Photozelle eine Elektrodenspannung, die größer ist als die Ionisierungsspannung  $U_i$  des Füllgases und ist der Elektrodenabstand größer als die mittlere freie Weglänge der Gasatome, so setzen Stoßionisationsprozesse im Gasraum ein. Die erzeugten Sekundärelektronen addieren gemeinsam mit den an der Kathode durch Bestrahlung ausgelösten Photoelektronen zur Anode, so daß ein „gasverstärkter“ Photostrom  $i_{ph}$  zustande kommt (s. Abb. 1). Man spricht von einer „inneren Verstärkung“ bei gasgefüllten Photozellen und definiert hierfür einen Faktor der inneren Verstärkung  $V$  als den Quotienten aus gasverstärktem Photostrom  $i_{ph}$  und primärem Photostrom  $i_0$ :

$$V = \frac{i_{ph}}{i_0} \quad (1)$$

In der Gasentladungsphysik wird der Strom  $i_0$  häufig auch als „Fremdstrom“ bezeichnet [5], [6], [7]. Eine Theorie des gasverstärkten Photostromes ist zuerst von TOWNSEND aufgestellt worden [4]. Er hat die einzelnen Ionisierungsspiele addiert und erhält für den Photostrom  $i_{ph}$  die Beziehung:

$$i_{ph} = \frac{e^{\int \alpha dx}}{1 - \Gamma(e^{\int \alpha dx} - 1)} \cdot i_0 \quad (2)$$

$\alpha$  = Ionisierungszahl,  $d$  = Elektrodenabstand,  
 $\Gamma$  = Rückwirkungsabbeute.

Aus dieser Gleichung ergibt sich unter Zuhilfenahme der Gl. (1) der Faktor  $V$  zu:

$$V = \frac{e^{\int \alpha dx}}{1 - \Gamma(e^{\int \alpha dx} - 1)} \quad (3)$$

Für eine gegebene Elektrodenspannung  $U$  ist das Integral  $\int \alpha \cdot dx$  eine Konstante.  $V$  hat damit einen festen Wert, der unabhängig vom primären Photostrom  $i_0$  ist. Setzt man in die letzte Gleichung die Daten üblicher gasgefüllter Photozellen ein, so ergeben sich bei geringen Belichtungen und Betriebsspannungen Werte für  $V$ , die etwa zwischen 3 und 100 liegen (vgl. SIMON-URMANN [13]; KOHLRAUSCH [11]). Im Zündpunkt ersagt diese Darstellung. Dort müßte nämlich auf Grund der Townsendschen Definition der Zündspannung der Nenner von Gl. (3) Null werden und damit eine unendlich große innere Verstärkung erzielbar sein. Das widerspricht der Erfahrung. Man weiß seit den Untersuchungen von ROGOWSKI [5], Fucks [6]

und SCHADE [7], daß im Zündpunkt an Stelle der Gl. (2) ein anderer funktioneller Zusammenhang zwischen gasverstärktem Photostrom  $i_{ph}$  und Fremdstrom  $i_0$  (primärer Photostrom) besteht.

Dort gilt:

$$i_{ph} = K \cdot \sqrt{i_0} \quad (4)$$

$K$  = Konstante.

Aus dieser Gleichung läßt sich nun auch für den Zündpunkt ein Verstärkungsfaktor  $V_z$  herleiten:

$$V_z = \frac{K}{\sqrt{i_0}} \quad (5)$$

Dieser Verstärkungsfaktor weist jetzt — im Gegensatz zur Townsend-Theorie — einen endlichen Wert auf. Nur für  $i_0 \rightarrow 0$  geht er gegen  $\infty$ . Wir verweisen hier kurz auf die hohe innere Verstärkung, die bei Lichtzählern erzielt wird. Für kleine Werte von  $i_0$  müßten sich demnach bei einer Betriebsweise der gasgefüllten

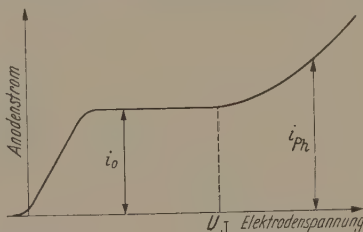


Abb. 1. Abhängigkeit des Photostroms einer gasgefüllten Photozelle von der Elektrodenspannung

Photozelle im Zündpunkt sehr hohe Verstärkungsfaktoren erzielen lassen. SCHADE [7] hat für die Konstante  $K$  experimentell den Wert

$$K = 9,4 \cdot 10^{-3} \sqrt{A}$$

ermittelt. Setzt man diesen Wert in Gl. (5) ein, so ergibt sich z.B. für  $i_0 = 10^{-10} A$  ein Wert  $V_z = 940$ . Das zeigt, daß man zu erheblich größeren Verstärkungsfaktoren kommen kann, als sie bisher in der Literatur bekannt wurden. Wir wollen im folgenden experimentell ermitteln, welche optimalen, d.h. maximalen inneren Verstärkungsfaktoren sich eigentlich in gasgefüllten Photozellen erreichen lassen. Dafür gibt es bisher keine sicheren oder vollständigen Angaben.

Wir wollen uns dabei nicht nur auf die Untersuchungen des Zündpunktes beschränken, sondern auch das anschließende selbständige Entladungsgebiet in größerem Umfang einer kritischen Betrachtung unterziehen. Voraussetzung hierbei ist allerdings, daß Photokathoden benutzt werden, die auch im Zündpunkt und im selbständigen Entladungsgebiet schädigungsfrei, d.h. ohne nachteilige Veränderung der physikalisch-chemischen Oberflächenstruktur, betrieben werden dürfen. Cäsiumoxyd- und Cäsiumantimonid-Photokathoden, die heute fast ausschließlich in gasgefüllten Photozellen Verwendung finden, genügen dieser Bedingung nicht. Es treten dort, wie Verfasser und S. WEBER gezeigt haben, reversible Ermüdungserscheinungen der Photoemission [8] und Sekundäremission auf. Diese haben ein Absinken des Photostromes mit der Zeitdauer der selbständigen Entladung zur Folge. Solche Ermüdungserscheinungen lassen sich vermeiden, wenn man Photokathoden benutzt,



die extrem dünne Zwischenschichten besitzen [9]. Als geeignet erweisen sich nach unseren bisherigen Beobachtungen zwei Kathodentypen, nämlich die Kaliumhydrid-Kathode mit dem Strukturschema:  $[\text{Ag}]-\text{KH}$ ,  $\text{K}-\text{K}$  und insbesondere die Kaliumoxyd-Kathode:  $[\text{Ag}]-\text{K}_2\text{O}$ ,  $\text{K}-\text{K}$ .

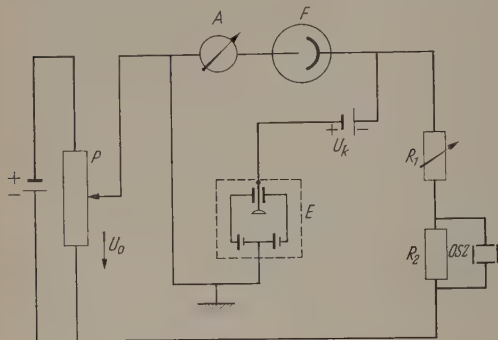


Abb. 2. Schaltung zur Messung von  $i_{ph} = f(i_0)$  an gasgefüllten Photozellen

Nach Gl. (1) wurde der Quotient aus gasverstärktem Photostrom  $i_{ph}$  und primärem Photostrom  $i_0$  als Verstärkung  $V$  definiert. Die oben gestellte Frage nach der optimalen inneren Verstärkung müßte sich dann beantworten lassen, wenn man  $i_{ph}$  als Funktion von  $i_0$  kennen würde. Dann könnte man daraus  $V$  berechnen

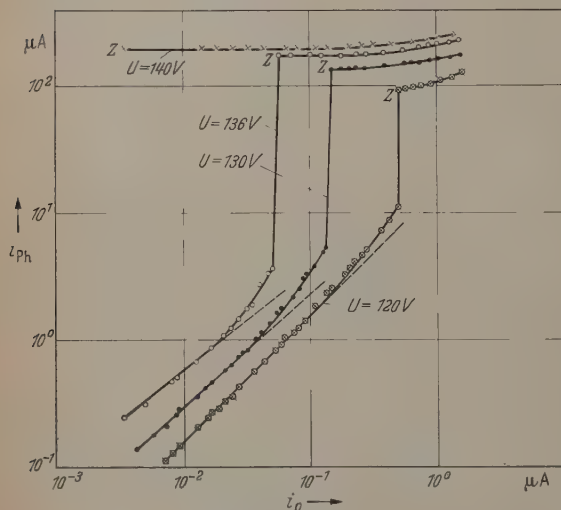


Abb. 3. Photostrom einer gasgefüllten Photozelle im unselbständigen und selbständigen Entladungsgebiet (Z Zündpunkt)

und somit auch den Maximalwert von  $V$  bestimmen. Zu diesem Zweck haben wir  $i_{ph}$  in Abhängigkeit von  $i_0$  gemessen. Dabei wurde der Abstand Lichtquelle-Photokathode und damit die Beleuchtungsstärke auf der Kathode variiert. Die Photozellen waren in der üblichen Weise mit etwa 0,1 Torr Argon gefüllt. Sie besaßen einen zylinderförmigen Elektrodenaufbau mit zentral angeordneter Anode. Die Kathode war auf der Glaswand des Zellengehäuses aufgebracht. Die Versuche haben wir mit unzerlegtem Licht einer Osram-Kleinkinlampe durchgeführt. Alle weiteren Vorkeh-

rungen, die bei diesen Versuchen zu beachten sind, haben wir bereits früher beschrieben [10]. In Abb. 3 geben wir nochmals die Schaltung an. Die Zellenspannung  $U$  muß bei diesen Messungen genau konstant gehalten werden. Abb. 3 zeigt das Ergebnis einer solchen Messung. Aus Übersichtlichkeitsgründen haben wir ein doppelt-logarithmisches Netz gewählt. Die Punkte Z stellen die Zündpunkte der selbständigen Entladung dar. Man erkennt, daß bis zu gasverstärkten Photoströmen  $i_{ph}$ , die etwa eine Größenordnung kleiner sind als die Photoströme in den Zündpunkten, ein linearer Zusammenhang zwischen gasverstärktem Photostrom  $i_{ph}$  und primärem Photostrom  $i_0$  (Fremdstrom) besteht. In diesem Gebiet ist demzufolge Gasverstärkungsfaktor  $V$  eine Konstante. Es gilt die Townsendsche Theorie und damit Gl. (2) bzw. (3). Das photoelektrische Proportionalitätsgesetz ist wahr. Mit zunehmender Elektrodenabstand  $U$  wird der Faktor  $V$  größer, was ebenfalls aus der Townsendschen Theorie folgt (vgl. die Kurven für  $U = 130$  und  $136$  V!). Für  $i_0 = 0,01 \mu\text{A}$  und  $U = 136$  V entnimmt man aus der Fig. 3 für  $i_{ph}$  den Wert  $0,56 \mu\text{A}$ , d. h. die innere Verstärkung beträgt  $V = 56$ . Bei Annäherung der drei Kurven an die Zündpunkte Z durch Steuerung der Kathodenbestrahlung gilt nun Gl. (2) nicht mehr. Der Photostrom steigt in diesem Gebiet stärker als linear mit  $i_0$  an. Die Zündpunkte selbst sind Unstetigkeitsstellen dar. Die Photoströme machen dort einen Sprung um 1 bis 2 Größenordnungen. Dieser Sprung erklärt sich aus der Entladungsgenetik (Abb. 6), wenn man  $U = \text{const}$  beachtet (vgl. die gezeichnete Horizontale und deren Schnittpunkte mit der Entladungsgenetik). Nach diesem Sprung, im Gebiet der anomalen Entladungsgenetik gesprochen: im Gebiet der anomalen Entladung, steigen die Photoströme  $i_{ph}$  nur noch wenig an. Sie sind aber eine physikalische Realität. Die Steuerbarkeit der Glimmentladung durch Kathodenbestrahlung ist — verglichen mit der im Vakuumstromgebiet — gering. Die verwendeten Photokathoden sind — wie oben schon bemerkt — den auftretenden Belastungen gewachsen. Wesentlich ist jedenfalls, daß sich eine Steuerbarkeit nachweisen läßt. Die Tatsache wird immer noch in der neueren in- und ausländischen Literatur angezweifelt, zum Teil in Abhängigkeit [11] bis [14]. Der gesamte, in Abb. 3 dargestellte Kurvenzug kann in umgekehrter Richtung durchlaufen werden, wobei die Abweichungen von Gl. (2) größer als die Meßgenauigkeit sind. Die Messungen sind also exakt reproduzierbar.

### Deutung der Versuchsergebnisse

Bevor aus den vorliegenden Versuchsergebnissen Rückschlüsse auf die innere Verstärkung gasgefüllter Photozellen im allgemeinen gezogen werden, soll funktioneller Zusammenhang zwischen  $i_{ph}$  und  $i_0$  deutet werden, soweit das mit unseren heutigen Kenntnissen der trägererzeugenden Prozesse in Gasentladungen möglich ist. Zunächst sollen dabei die gemessenen Abweichungen von Gl. (2) einer kritischen Betrachtung unterzogen werden. Zu ihrer Deutung bedienen wir uns der Rogowskischen Gesetzmäßigkeiten [5], welche auch als „erweiterte“ Townsendsche Zündtheorie bezeichnet werden. Von ihnen ist am bekanntesten das Wurzelgesetz der Zündspannungsabsenkung durch Kathodenbestrahlung.



Für unsere Zwecke benötigen wir zunächst die Rogowskische Darstellung des unselbständigen Entladungsstromes kurz vor dem Zündpunkt, im Gebiet der sog. Townsendentladung. Dort gilt für die Stromdichte

$$j = \frac{-\Delta U \cdot b - \sqrt{b^2 \cdot \Delta U^2 - 4a \cdot \dot{i}_0 \cdot S_0}}{2a} \quad (6)$$

ist die durch Kathodenbestrahlung geweckte Fremdstromdichte und  $\Delta U$  die Differenz aus der Elektrodenanordnung  $U$  und der Zündspannung  $U_z$  ohne Kathodenbestrahlung. Die Größen  $a$ ,  $b$  und  $S_0$ , die im vorliegenden Fall nicht weiter interessieren, sind Konstanten. Die Stromdichte  $j$  ist identisch mit der gasverstärkten Photostromdichte  $\dot{i}_{ph}$ . Durch eine einfache Zwischenrechnung erhält man dann aus Gl. (6), wenn  $f$  die Fläche der Kathode ist, den gesuchten gasverstärkten Photostrom  $\dot{i}_{ph}$  als Funktion von  $\dot{i}_0$  (Photostrom):

$$\dot{i}_{ph} = -\frac{\Delta U \cdot b \cdot f}{2a} - \sqrt{\frac{b^2 \cdot \Delta U^2 \cdot f^2}{4a^2} - \frac{4a \cdot \dot{i}_0 \cdot S_0 \cdot f}{a}} \quad (7)$$

Der qualitative Verlauf des Photostromes ist, wie er aus Gl. (7) folgt, in Abb. 4 im Prinzip wiedergegeben. Es ergibt sich ein Parabelbogen, dessen Scheitelpunkt mit dem Zündpunkt zusammenfällt. Ein Vergleich zwischen Abb. 4 und 3 zeigt, daß unsere Meßergebnisse auf diesem Wege bis zu den Zündpunkten  $Z$  gedeutet werden können. Das wird noch deutlicher, wenn man sie in Abb. 3 wiedergegebenen Meßergebnisse in linearem Maßstab umzeichnet. In Abb. 5 wurde das für die Elektrodenanordnung  $U = 130 \text{ V}$  und  $U = 136 \text{ V}$  für einen Teil des Vorstromes durchgeführt. Man erhält denselben Kurvencharakter wie er in Abb. 4 skizziert wurde.

Damit können die Kurven der Abb. 3 bis zum Einsetzen der selbständigen Entladung als ausreichend gedeutet gelten. Wir haben nun noch das Geschehen in den Zündpunkten zu klären. Zu diesem Zweck haben wir in Abb. 6 schematisch eine Schar von Entladungsgenetiken gasgefüllter Photozellen dargestellt, die man sie für drei verschiedenen starke Kathodenbestrahlungen erhält [5]. Die Zündpunkte der selbständigen Entladung sind mit  $Z_1$ ,  $Z_2$  und  $Z_3$  gekennzeichnet. Sie verschieben sich gemäß der Rogowskischen Zündtheorie mit stärkerer Kathodenbestrahlung zu geringeren Spannungen und größeren Strömen hin. Es sei darauf hingewiesen, daß man solche Charakteristiken nur dann erhalten kann, wenn man stabile und ermüdungsfreie Photokathoden verwendet. Ansonsten überdecken Ermüdungs- und Erholungsvorgänge vollständig den wahren Verlauf [15]. In Abb. 6 ist noch eine Parallele zur Abszissenachse eingezeichnet. Auf dieser Geraden bewegt man sich, wenn man  $\dot{i}_{ph}$  als Funktion von  $\dot{i}_0$  bei konstant gehaltener Elektrodenanordnung mißt. Wie Abb. 6 lehrt, springt nun für  $\dot{i}_0 = \dot{i}_{02}$  der Photostrom vom Punkt  $Z_2$  bis zum Punkt  $A$ . Dabei wird das unternormale und normale Glimmgebiet übersprungen. Der nächste Meßpunkt nach der Einstellung der selbständigen Entladung liegt also bereits im anomalen Glimmgebiet. Dort ist die Elektrodenanordnung gleich der durch Kathodenbestrahlung abgesenkten Zündspannung. Danach steigt der verstärkte Strom, da wir uns im Gebiet der anomalen Glimmentladung befinden, wieder stetig mit  $\dot{i}_0$  an. Aus den gemessenen Strom-Spannungs-Charakteristi-

ken ergibt sich, daß der Strom im anomalen Glimmgebiet nur noch wenig von  $\dot{i}_0$  zu beeinflussen ist. Die Entladungscharakteristiken gehen dort asymptotisch ineinander über.

Wir müssen noch auf eine Besonderheit der Abb. 3 hinweisen, und zwar auf die oberste Kurve für  $U =$

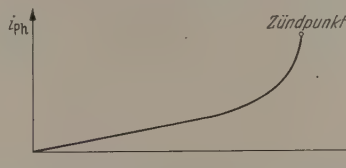


Abb. 4. Zusammenhang zwischen Photostrom  $\dot{i}_{ph}$  und Fremdstrom  $\dot{i}_0$  nach der erweiterten Townsendschen Zündtheorie

140 V. Bei dieser Kurve setzt nämlich bereits für kleinste Werte von  $\dot{i}_0$  die Zündung der selbständigen Entladung ein. Der Grund hierfür ist darin zu sehen, daß die Elektrodenanordnung nur wenig unterhalb der

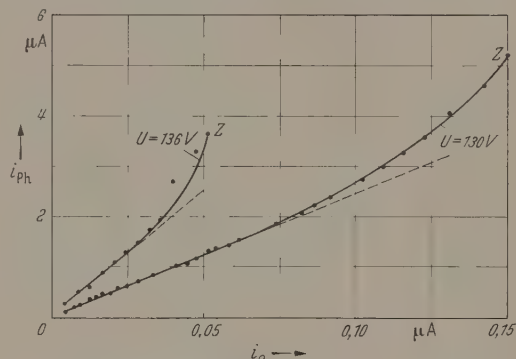


Abb. 5. Photostrom  $\dot{i}_{ph}$  einer gasgefüllten Photozelle im unselbständigen Entladungsgebiet

Zündspannung  $U_z$  ohne Kathodenbestrahlung liegt, so daß eine geringe Kathodenbestrahlung ausreicht, um die Zündspannung  $U_z$  auf die Elektrodenanordnung  $U$  abzusinken und die selbständige Entladung einzuleiten.

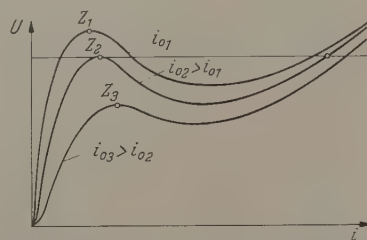


Abb. 6. Grundsätzlicher Verlauf von Entladungscharakteristiken gasgefüllter Photozellen bei drei verschiedenen Bestrahlungsstärken

leiten. Infolgedessen fehlt bei dieser Kurve das unselbständige Entladungsgebiet sowie der Sprung zum Zündpunkt. Wir messen lediglich den Strom im anomalen Glimmgebiet.

Aus den Kurven der Abb. 3 kann man nun auf die innere Verstärkung  $V$  bei gasgefüllten Photozellen schließen, wenn man den Quotienten  $\dot{i}_{ph}/\dot{i}_0$  bildet. Wir haben die Ergebnisse in Abb. 7 aufgezeichnet. Man erkennt, daß der Verstärkungsfaktor  $V$  im unselbständigen Entladungsgebiet für eine konstante Elektrodenanordnung  $U$  bei Vergrößerung des Fremdstromes  $\dot{i}_0$



zunächst konstant bleibt, wie das von der Townsend'schen Theorie her gefordert wird. Bei Annäherung an den Zündpunkt  $Z$  nimmt  $V$  stetig zu. Im Zündpunkt

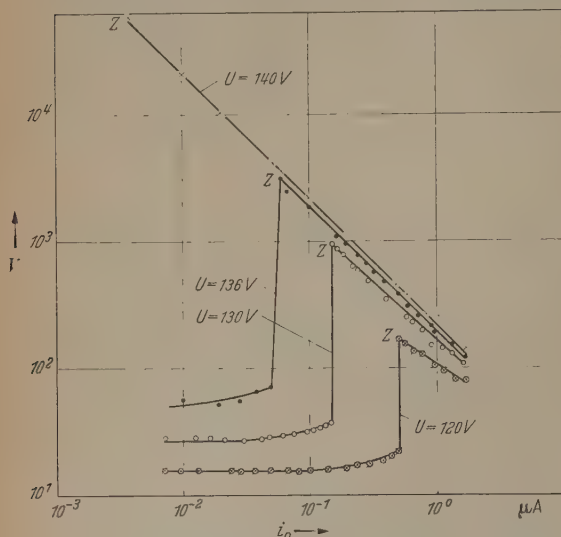


Abb. 7. Innere Verstärkung einer gasgefüllten Photozelle bei verschiedenen Zellenspannungen

ändert sich  $V$  sprunghaft nach hohen Werten, um danach wieder stetig abzufallen. Das Maximum der Verstärkung einer gasgefüllten Photozelle tritt also im Zündpunkt der selbständigen Entladung auf. Es

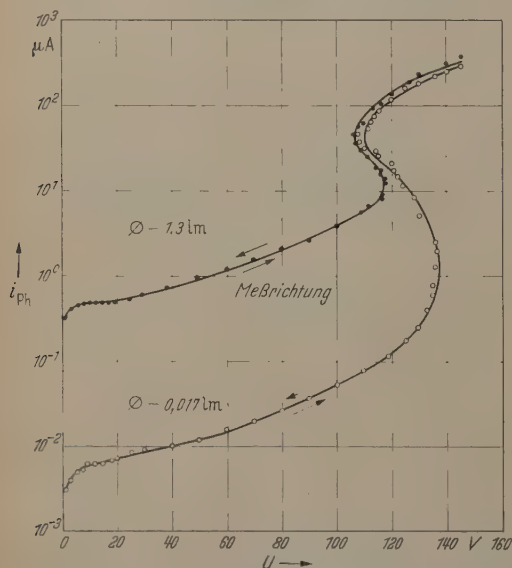


Abb. 8. Erweiterte Photostromcharakteristiken einer gasgefüllten Photozelle

werden dabei Werte erreicht, die etwa um den Faktor  $10^2$ – $10^3$  größer sind, als sie in der bisherigen Fachliteratur angegeben werden. Fernerhin nimmt dieses Maximum mit der Elektrodenspannung  $U \rightarrow U_z$  zu. So erhält man in unserem Beispiel für eine Elektrodenspannung  $U = 140$  V, die nur 1 V unterhalb der Zündspannung  $U_z$  ohne Kathodenbestrahlung liegt, einen

maximalen Verstärkerfaktor  $V_{\max} = 63\,800$ . — Hier ließe sich der Zündpunkt genauso wie in Abb. 3 am Anfang der Kurve. — Dieser Wert von  $V$  ist schon vergleichbar mit den bei mehrstufigen Sekundärelektronenvervielfachern erreichbaren Verstärkungsfaktoren. Wir heben hervor, daß eine derartige Steigerung der inneren Verstärkung bei einer gasgefüllten Photozelle einzig und allein durch die Heranziehung des selbständigen Entladungsgebietes, und zwar des anomalen Glühgebietes erzielbar ist.

Bei Abb. 7 sind nun zwei Bedingungen für die maximale innere Verstärkung bei gasgefüllten Photozellen ablesbar. Sie lauten:

1.  $U \rightarrow U_z$ .
2.  $i_0 \rightarrow 0$ .

Sie werden — rein aus der Erfahrung — bereits schon lange bei der Beschaltung von Lichtzählern (Lichtquantenzähler) angewendet. Allgemein glauben wir sagen zu dürfen, daß man von einer optimalen Ausnutzung der gasgefüllten Photozelle erst beim Betreten

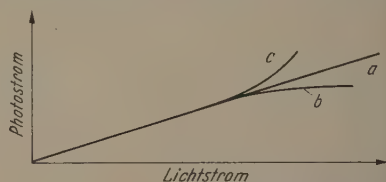


Abb. 9. Gemessene Abweichungen vom lichtelektrischen Proportionalitätsgesetz an gasgefüllten Photozellen. a Proportionalität; b Abweichung nach STEINKE; c Abweichung nach SIMON und KLUGE

im selbständigen Entladungsgebiet reden kann. Grund dieser Tatsache ist es sinnvoll, die bisher nur im unselbständigen Entladungsgebiet gemessene Photostromcharakteristik (s. Abb. 1) über den Zündpunkt hinaus weiter zu führen. Solche „erweiterte Photostromcharakteristiken“ sind in Abb. 8 dargestellt.

## Die lichtelektrischen Gesetze gasgefüllter Photozellen

### 1. Gültigkeitsgrenzen des lichtelektrischen Proportionalitätsgesetzes

Wird die Kathode einer Vakuumphotozelle mit Licht bestrahlt, so gilt für den Photostrom  $i_{ph}$  die Beziehung:

$$i_{ph} = k_{i0} \cdot \Phi$$

$k_{i0}$  = lichtelektrische Empfindlichkeit,  
 $\Phi$  = eingestrahelter Lichtstrom.

In einer linearen Darstellung ergibt sich für  $i_{ph} = f(\Phi)$  eine Gerade mit der Steigung  $k_{i0}$ , Proportionalitätskonstante (s. Abb. 9 Kurve a). Dieses Proportionalitätsgesetz ist durch eine Vielzahl experimenteller Untersuchungen bestätigt worden, so daß es heute als ausreichend gesichert gelten kann. KLUGE und WEISS bestätigten die Gültigkeit dieses Gesetzes über die weitesten Bereiche — etwa 8 Größenordnungen — der eingestrahlenen Lichtintensität. Falls in der Vergangenheit Abweichungen beobachtet wurden, so beruhen sie offenbar auf sekundären Erscheinungen wie Feldkonstruktionen der Zelle oder Ermüdungserscheinungen an den Kathoden [16], [17]. Für gasgefüllte Photozellen erfährt die Gl. (8) eine Abwandlung. An Stelle der lichtelektrischen Empfindlichkeit  $k_{i0}$  tritt die Stromempfindlichkeit  $k_i$  der Zelle, die von der Spannung abhängt.

$$i_{ph} = k_i \cdot \Phi.$$



iese Gleichung gilt jeweils nur für eine bestimmte Elektrodenspannung. Deshalb ergibt sich bei der gasgefüllten Photozelle im Gegensatz zur Vakuumphotozelle nicht nur eine einzige Proportionalitätsgerade, sondern eine ganze Schar von solchen Geraden.

Eine Durchsicht der einschlägigen Literatur lehrt, daß man an gasgefüllten Photozellen oft Abweichungen vom lichtelektrischen Proportionalitätsgesetz festgestellt hat. Dabei sind die Ergebnisse verschiedener Autoren zum Teil sehr widersprechend. So findet z. B. REINKE [18] an einer mit Argon gefüllten Zelle, daß zwischen Photostrom  $i_{ph}$  und Lichtstrom  $\Phi$  folgende Beziehung besteht:

$$i_{ph}^z = c \cdot \Phi \quad z > 1. \quad (10)$$

In dieser Gleichung sind  $z$  und  $c$  Konstanten. Die Zellenkonstante  $z$  ist größer als 1. Sie ist eine Funktion der Elektrodenspannung  $U$  und der Wellenlänge  $\lambda$  des eingestrahlten Lichtes. Mit abnehmender Wellenlänge nimmt  $z$  zu. Den größten Wert für  $z$  hat STEINKE bei  $\lambda = 316 \text{ m}\mu$  mit 1,35 gemessen. Außerdem strebt  $z$  mit abnehmender Elektrodenspannung gegen 1. In Abb. 9 sind die Ergebnisse der Untersuchungen von REINKE durch Kurve *b* charakterisiert. Die Gl. (10) können nun v. HALBAN und EBERT [19] nicht bestätigen. Sie behaupten vielmehr, das Verhalten der von STEINKE untersuchten gasgefüllten Photozelle sei eine Ausnahme. Spätere Arbeiten von CARRUTHERS und HARRISON [20] und von KORTÜM [21] bestätigen wiederum die Ergebnisse von STEINKE. So gibt KORTÜM [21] für  $\lambda = 313 \text{ m}\mu$  einen Wert von  $z = 1,482$  bei einer Elektrodenspannung von 180 V an.

Im Gegensatz zu diesen Untersuchungen haben IMON und KLUGE [22] bei Annäherung an die Zündspannung einen überproportionalen Anstieg des Photostromes gemessen (Kurve *c* in Abb. 9). Nach ihnen müßte an Stelle der Gl. (10) die Beziehung stehen:

$$i_{ph} = c \cdot \Phi^z \quad z > 1. \quad (11)$$

Für eine Klarstellung der Widersprüche ist bis heute nicht erfolgt. Wir wenden uns dieser Aufgabe zu unter Berücksichtigung der in Abschnitt 1 gewonnenen Ergebnisse über die innere Verstärkung. Wir lösen zu diesem Zweck die Gl. (1) nach  $i_{ph}$  auf und erhalten:

$$i_{ph} = V \cdot i_0. \quad (12)$$

Fernerhin greifen wir auf die Darstellung des Vakuumphotostromes durch Gl. (8) zurück. Dieser Strom ist identisch mit dem unverstärkten primären Photostrom  $i_0$  gasgefüllter Photozellen. Es gilt demgemäß:

$$i_{phv} = k_{i0} \cdot \Phi = i_0. \quad (13)$$

Setzt man den Wert für  $i_0$  aus Gl. (13) in Gl. (12) ein, so ergibt sich:

$$i_{ph} = V \cdot k_{i0} \cdot \Phi. \quad (14)$$

In dieser Gleichung ist  $k_{i0}$  eine Konstante, sofern man mit stabilen Photokathoden arbeitet. Infolgedessen wird der Zusammenhang zwischen  $i_{ph}$  und  $\Phi$  in gasgefüllten Photozellen einzig und allein durch den Faktor der inneren Verstärkung  $V$  bestimmt. Man muß daher für  $i_{ph} = f(\Phi)$  gleichartige Kurven messen, die sie in Fig. 3 zu erkennen sind. Abb. 10 bestätigt diese Forderung.

Bei unseren Untersuchungen wurden wiederum Photozellen mit ermüdungsfreien Kathoden ver-

wendet. Wir haben  $i_{ph}$  als Funktion der Beleuchtungsstärke  $L$  auf der Kathodenoberfläche unter Zugrundelegung der Definitionsgleichung:

$$L = \frac{\Phi}{F} \quad (15)$$

( $F$  = Kathodenfläche)

aufgenommen. Dabei muß  $F$  während der Versuchsdurchführung konstant bleiben. Fernerhin muß dafür Sorge getragen werden, daß sich die Größe  $k_{i0}$  nicht ändert. Es dürfen deshalb nur solche Mittel zur Änderung von  $L$  benutzt werden, bei denen die spektrale Zusammensetzung der Lichtquelle konstant bleibt. Wir haben deshalb  $L$  unter Anwendung des photometrischen Entfernungsgesetzes variiert. Wir benutz-

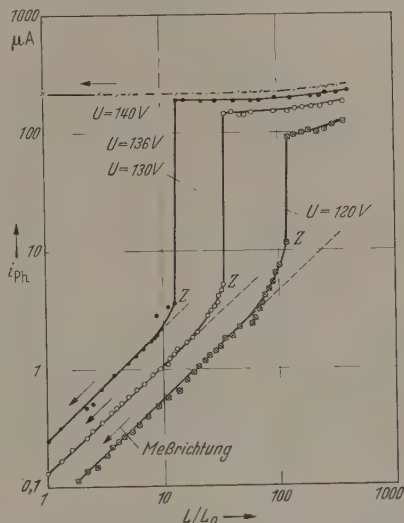


Abb. 10. Photostrom einer gasgefüllten Photozelle als Funktion der relativen Beleuchtungsstärke  $L/L_0$  bei verschiedenen Zellenspannungen

ten eine Osram-Kleinkinlampe, bei der man bis zu einem Abstand von etwa  $r = 10 \text{ cm}$  mit dem Entfernungsgesetz fehlerfrei arbeiten kann. Unter Hinzunahme eines Graufilters mit dem Schwächungskoeffizienten 3,03 konnten wir die Beleuchtungsstärke auf der Photokathode im Verhältnis 1:10<sup>3</sup> variieren. Der dabei auftretende Meßfehler konnte bis zu  $\pm 4\%$  betragen. Im übrigen wurden wiederum die im Abschnitt 2 erwähnten Hilfsmittel zur Konstanthaltung der Beleuchtungsstärke herangezogen. Als Abszissenmaßstab haben wir in der Abb. 10 die relative Beleuchtungsstärke  $L/L_0$  gewählt.  $L_0$  betrug dabei 10,5 Lux. Zwecks übersichtlicher Darstellung der Versuchsergebnisse haben wir wiederum ein doppelt-logarithmisches Netz gewählt. Dann müssen die Proportionalitätsgeraden unabhängig von der Elektrodenspannung unter einem Winkel von 45° zur Abszissenachse verlaufen. Ein Vergleich zwischen Abb. 3 und 10 zeigt nun, daß zwischen gasverstärktem Photostrom  $i_{ph}$  und Beleuchtungsstärke  $L$  genau derselbe Zusammenhang besteht, wie zwischen  $i_{ph}$  und  $i_0$ . Nur bis zu gasverstärkten Photoströmen, die etwa eine Größenordnung kleiner sind als die Zündströme, gilt das lichtelektrische Proportionalitätsgesetz in aller Strenge. Bei Annäherung an den Zündpunkt treten Abweichungen von den Proportionalitätsgeraden (gestrichelt



weitergezeichnet) in dem von SIMON und KLUGE [22] beobachteten Sinne auf. Diese können mit der erweiterten Townsendschen Zündtheorie [5], [6] gedeutet werden. Daraus folgt, daß alle von anderer Seite bisher beobachteten Abweichungen im Sinne einer Unterproportionalität andere Ursachen haben müssen und

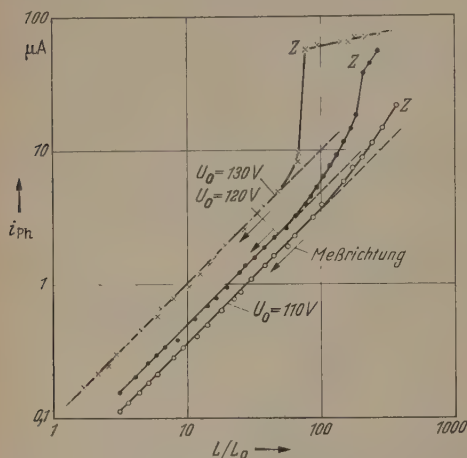


Abb. 11. Arbeitskennlinien einer gasgefüllten Photozelle für  $R_s = 221 \text{ k}\Omega$

nicht aus dem Entladungsgeschehen heraus zu verstehen sind. Wir halten somit fest, daß an fehlerfrei konstruierten gasgefüllten Photozellen mit ermüdungsfreien Kathoden vor dem Zündpunkt lediglich Abweichungen in Richtung einer Überproportionalität auftreten können. Im Zündpunkt und im selbständigen Entladungsgebiet treten dann wieder die schon

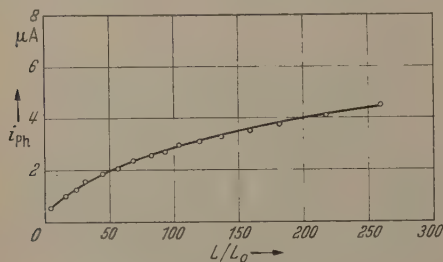


Abb. 12. Arbeitskennlinie einer gasgefüllten Photozelle für  $U_0 = 130 \text{ V}$ ,  $R_s = 1,3 \text{ M}\Omega$

beschriebenen starken Abweichungen im Sinne einer Unterproportionalität auf. Wesentlich erscheint uns nun die physikalische Tatsache, daß der nach der Zündung fließende Entladungsstrom durch Kathodenbestrahlung noch steuerbar ist. Eine theoretische Behandlung dieses Befundes stellen wir zurück.

Abschließend soll noch ein Zahlenwert für die Stromempfindlichkeit  $k_i$  genannt werden, der sich aus unseren Messungen ergibt. Der größte Wert, den wir gemessen haben, belief sich auf  $1,7 \cdot 10^4 \mu\text{A/lm}$ . Bei Verwendung von bisher bekannten gasgefüllten Cäsiumoxyd- oder Cäsiumantimonid-Photozellen dagegen lassen sich im Vorstromgebiet nur Werte für  $k_i$  erreichen, die zwischen 200 und  $400 \mu\text{A/lm}$  liegen [23]. Obwohl die lichtelektrische Empfindlichkeit  $k_{i0}$  der von uns verwendeten Kathoden merklich kleiner ist als die von bekannten, heute in der Technik üblichen

Cäsiumoxyd- und Cäsiumantimonid-Photokathoden, wir können mit Werten zwischen  $1 \mu\text{A/lm}$  und  $5 \mu\text{A/lm}$  rechnen — sind die maximal erreichbaren Stromempfindlichkeiten bei Gasfüllung doch um den Faktor  $10^2$  größer als die von gasgefüllten Cäsiumoxyd- oder Cäsiumantimonid-Photozellen. Der Grund für die Steigerung der maximalen Stromempfindlichkeit um zwei Größenordnungen ist wiederum die volle Ausnützung der Gasverstärkung, die aber eben nur ermüdungsfreien Photokathoden möglich ist. Allerdings bleibt eine Ausnützung dieser maximalen Stromempfindlichkeit nur auf solche Anwendungen beschränkt, bei denen keine exakte Proportionalität zwischen Photostrom und Lichtstrom gefordert wird.

## 2. Die Arbeitskennlinien gasgefüllter Photozellen

Bisher haben wir unsere Untersuchungen zur Frage der Proportionalität zwischen Photostrom und Lichtstrom in gasgefüllten Photozellen — wie allgemein

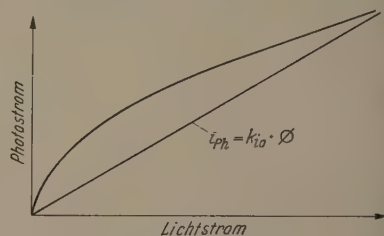


Abb. 13. Theoretischer Verlauf der Arbeitskennlinie für größere Stabilisierungswiderstände  $R_s$

üblich — bei konstanter Elektrodenspannung durchgeführt. Diese Versuchsbedingung ist gleichbedeutend mit der Annahme, daß der Stabilisierungswiderstand null sei. Bekanntlich muß aber eine gasgefüllte Photozelle immer mit einem Widerstand reeller oder komplexer Größe in Reihe geschaltet werden, um bei Zündung der selbständigen Entladung den Entladungsstrom zu stabilisieren. In der Praxis interessiert daher folgender Fall:

Gegeben ist eine gasgefüllte Zelle, welche an eine konstante treibende Spannung  $U_0$  mit einem konstanten Stabilisierungswiderstand  $R_s$  angeschlossen ist. Gesucht wird der Photostrom  $i_{ph}$  als Funktion des Lichtstromes  $\Phi$  bzw. der Beleuchtungsstärke  $L$ . Es fragt ist dabei wiederum, inwieweit Proportionalität zwischen Photostrom und Lichtstrom besteht. Wir haben deshalb unsere experimentellen Untersuchungen mit Messungen über den Verlauf der Funktion  $i_{ph} f(L)$  mit  $U_0$  und  $R_s$  als Parameter weitergeführt. Vollen die sich dabei ergebenden Kennlinien einer gasgefüllten Photozelle im folgenden als *Arbeitskennlinien* bezeichnen. Die im vorhergehenden Abschnitt genannten Kennlinien für  $R_s = 0$  sollen dagegen *Kuschlußkennlinien* genannt werden.

Es ist zu erwarten, daß für kleine Stabilisierungswiderstände die Arbeitskennlinien und die Kuschlußkennlinien nahezu identisch sind. Die obere Grenze dieses Bereiches wird vom maximalen Photostrom, der in einer gegebenen gasgefüllten Photozelle auftreten kann, sowie von der Größe des Stabilisierungswiderstandes bestimmt werden. Solange der Spannungsabfall an  $R_s$  im Vergleich zur Elektrodenspannung der Photozelle gering ist, wird man praktisch



ch mit den Kurzschlußkennlinien arbeiten können. lehrt ein Vergleich der Abb. 11 mit Abb. 10, daß i den von uns untersuchten Photozellen etwa im reich  $R_s < 300 \text{ k}\Omega$  und  $U_0 < 130 \text{ V}$  Arbeits- und kurzschlußkennlinien sich im großen und ganzen noch stark ähneln. Nur die Zündpunkte sind in der Abb. 11 zu größeren Photoströmen verschoben. Hingegen ist in bezug auf die Proportionalitätsgerade zwischen Photostrom und Beleuchtungsstärke kein wesentlicher Unterschied festzustellen.

Einen ganz anderen Verlauf der Arbeitskennlinie erhält man dagegen für sehr große Stabilisierungs- widerstände, wie Abb. 12 zeigt. Ein proportionales Verhalten wird nicht mehr beobachtet. Demzufolge ist es im allgemeinen nicht zweckmäßig, die Stabilisierungswiderstände gasgefüllter Photozellen zu groß wählen. Als Richtwert seien  $300 \text{ k}\Omega$  genannt. Im Falle einer Überschreitung der Zündspannung entsteht dann eine Glimmentladung, welche die von uns gewählten Kathoden erfahrungsgemäß noch nicht ausreicht. Wir erhalten für gasgefüllte Photozellen also etwa dasselbe Verhalten, wie es bei Photoelementen bekannt ist [23]. Auch dort ergeben große Außenwiderstände erhebliche Abweichungen von der Proportionalität. Wir wenden uns nun noch der Deutung des Meßbeispiels der Abb. 12 zu. Dabei gehen wir vom Photostrom im unselbständigen Entladungsgebiet (2) aus.

Ferner gilt für den Fremdstrom  $i_0$  die Gl. (13). Wir setzen sie in Gl. (2) ein. Dann ergibt sich

$$i_{Ph} = \frac{e^0 \int \alpha dx}{1 - \Gamma \left( e^0 \int \alpha dx - 1 \right)} \cdot k_{i0} \cdot \Phi. \quad (17)$$

Wenn man die elektrische Feldverteilung im Entladungsraum der gasgefüllten Photozelle kennen würde, dann könnte man das Integral  $\int \alpha dx$  lösen und so die Arbeitskennlinie  $i_{Ph} = f(\Phi)$  berechnen. Da das nicht der Fall ist, muß man sich darauf beschränken, den qualitativen Verlauf der Funktion  $i_{Ph} = f(\Phi)$  aufzusehen. Zu diesem Zweck wird von der Darstellung des Elektronenionisierungskoeffizienten  $\alpha$  ausgegangen:

$$\alpha = p \cdot A \cdot e^{-\frac{Bp}{E}} \quad (18)$$

$p$  = Gasdruck in der Photozelle,  
 $E$  = Feldstärke im Entladungsraum,  
 $A$  und  $B$  = Konstante.

Überdem soll die Neigung der gesuchten Arbeitskennlinie durch Differentiation der Gl. (17) bestimmt werden:

$$\frac{di_{Ph}}{d\Phi} = \frac{e^0 \int \alpha dx}{1 - \Gamma \left( e^0 \int \alpha dx - 1 \right)} k_{i0}. \quad (19)$$

Mit Hilfe der Gl. (19) läßt sich nun der Verlauf der Arbeitskennlinien qualitativ für große  $R_s$  in folgender Weise bestimmen:

Mit wachsendem Lichtstrom  $\Phi$  wird der Photostrom größer. Damit nimmt der Spannungsabfall an  $U$  zu und die Elektroden spannung  $U_0$  konstant bleibt, ab. Infolgedessen wird der Elektronenionisierungskoeffizient  $\alpha$  nach Gl. (18)

kleiner. Damit nimmt aber auch die Neigung der Arbeitskennlinie  $di_{Ph}/d\Phi$  mit wachsendem  $i_{Ph}$  ab. Für  $i_{Ph} \rightarrow U_0/R_s$  geht  $U \rightarrow 0$ ,  $\alpha \rightarrow 0$  und  $di_{Ph}/d\Phi \rightarrow k_{i0}$ . Das bedeutet, für große Beleuchtungsstärken und große  $R_s$  haben die Arbeitskennlinien gasgefüllter Photozellen dieselbe Neigung wie die Proportionalitätsgerade der Vakuumphotozelle. Eine innere Verstärkung der Photoemissionsströme im Entladungsraum der Photozelle erfolgt nicht mehr. Somit muß sich für die Arbeitskennlinie bei großem  $R_s$  ein qualitativer Verlauf ergeben, wie wir ihn in der Abb. 13 skizziert haben. Die Arbeitskennlinie ist im Grunde genommen nichts weiter als die Verbindungslinie von Punkten, die auf Proportionalitätsgeraden abnehmender Neigung liegen. Damit ist der Inhalt der Abb. 12 qualitativ gedeutet.

### Zusammenfassung

Eindeutige Aussagen über die Verwendbarkeit der gasgefüllten Photozellen als objektives Photometer lassen sich nur dann machen, wenn man mit Photozellen arbeitet, die dem Einstrom positiver Gasionen gegenüber eine ausreichende Stabilität besitzen. — Solche Kathoden sind ermüdungsfrei und werden neuerdings als Photo-Glimmkathoden bezeichnet [24]. — Wir haben zunächst die inneren Verstärkereigenschaften gasgefüllter Photozellen als Funktion der Elektroden spannung und des eingestrahelten Lichtstromes bzw. des durch ihn geweckten primären Photoemissionsstromes an der Kathode untersucht. Dabei ergibt sich, daß eine gasgefüllte Photozelle im Zündpunkt der selbständigen Entladung ein Maximum in bezug auf die innere Verstärkung aufweist. Dieses Maximum kann aus dem Verlauf der Entladungsgenetiken heraus verstanden und gedeutet werden. Nach erfolgter Zündung verschwindet der Effekt der inneren Verstärkung nicht. Er nimmt mit steigender Kathodenbestrahlung stetig ab. Wenn man also bei Anwendungen von gasgefüllten Photozellen vor allem Wert auf ihre inneren Verstärkereigenschaften legt, wird man sie zweckmäßigerweise im Zündpunkt betreiben. Das wird z. B. immer dann der Fall sein, wenn solche Photozellen als elektronische Schalter benutzt werden sollen. Bei Verwendung einer gasgefüllten Photozelle mit ermüdungsfreier Kathode lassen sich dann Relaiskreise aufbauen, bei denen die Photozelle ohne Zwischenschaltung einer Verstärkerröhre das Relais zum Ansprechen bringt. Auch lassen sich, wie der eine von uns [25] gezeigt hat, damit lichtelektrische bistabile Kippschaltungen aufbauen, die u. a. für elektronische Rechenmaschinen Verwendung finden können.

Bzüglich des lichtelektrischen Proportionalitätsgesetzes an gasgefüllten Photozellen haben unsere Untersuchungen gezeigt, daß bei Überschreitung eines Photostromes, der etwa  $1/10$  des Zündstromes beträgt, ganz allgemein an fehlerfrei konstruierten Zellen mit ermüdungsfreien Kathoden Abweichungen vom lichtelektrischen Proportionalitätsgesetz auftreten.

Diese Abweichungen sind, wie die von ROGOWSKI und FUCHS erweiterte Townsendsche Theorie erwarten läßt, vor dem Zündpunkt eindeutig überproportional und als solche streng reproduzierbar. Angesichts der Übereinstimmung zwischen Experiment und Theorie dürfte damit eine bisher ungeklärte Streitfrage im Schrifttum behoben sein. Auch nach Überschreiten des Zündpunktes können gasgefüllte Photozellen grundsätzlich als objektive Photometer benutzt werden. Es

kann dort das lichtelektrische Proportionalitätsgesetz gemessen werden, nunmehr aber mit Abweichungen im Sinne einer *Unterproportionalität*.

Für die Zwecke der wissenschaftlichen Photometrie wird man die gasgefüllte Zelle — wie bisher — in ausreichendem Abstand vor dem Zündpunkt betreiben. Bei elektroakustischen Aufgaben (Tonfilm) wird man ebenso verfahren, weil man sonst das lästige Rauschen in Kauf nehmen muß. Sind jedoch Relais lichtelektrisch zu tätigen, so kann man die gasgefüllte Zelle — entgegen weit verbreiteter Meinungen — unbedenklich als Glimmröhre benutzen und sogar mit Stromdichten belasten, welche im Ausgangsbereich des anomalen Glimmgebietes liegen (vgl. Abb. 6). Voraussetzung ist allerdings immer die Benutzung stabiler ermüdungsfreier Photokathoden.

Die vorliegenden Untersuchungen wurden zum Teil mit Geräten der Deutschen Forschungsgemeinschaft durchgeführt, wofür wir unseren Dank aussprechen. Des weiteren danken wir Herrn Dipl.-Phys. S. WEBER für die Unterstützung bei der Herstellung ermüdungsfreier Photokathoden.

**Literatur:** [1] KLUGE, W.: Z. techn. Phys. Nr. 12, 591 (1934). — [2] BRANDMÜLLER, J., u. H. MOSER: Z. angew. Phys. 8, 95, 142 (1956). — [3] FRÜNGEL, F.: Z. angew. Phys. 5, 102

(1953). — [4] TOWNSEND, J. S. MARX: Handbuch der Radiologie, Bd. I. 1920. — [5] ROGOWSKI, W.: Arch. Elektrotechn. 648 (1932). — ROGOWSKI, W.: Z. Physik 117, 265 (1941). — [6] FÜCKS, W.: Z. Physik 92, 467 (1934). — [7] SCHADE, J. Z. Physik 105, 595 (1937). — [8] KLUGE, W., u. A. SCHULZ: Z. Physik 146, 314 (1956). — KLUGE, W., u. S. WEBER: angew. Phys. 7, 126 (1955). — [9] SCHULZ, A.: Diss. T. Stuttgart 1957. — [10] KLUGE, W., u. A. SCHULZ: Z. Physik 142, 83 (1955). — [11] KOHLRAUSCH, F.: Praktische Physik 20. Aufl., Bd. II, S. 476. Stuttgart: Teubner 1956. — [12] GÖRLICH, P.: Die Photozellen, S. 189. Leipzig: Akademische Verlagsgesellschaft 1951. — [13] SIMON, H., u. R. SUHRMANN: lichtelektrische Effekt, S. 285. Berlin: Springer 1958. — [14] ZWORYKIN, V. K., u. E. G. RAMBERG: Photoelectricity and its application, S. 125 u. 127. New York 1949. — [15] KLUGE, W., u. A. SCHULZ: Ann. Phys. (6) 18, 321 (1956). — [16] ROSENBERG, H.: Z. Physik 7, 18 (1921). — [17] IV H. E.: Astrophys. J. 39, 428 (1914). — [18] STEINKE, E.: Physik 11, 215 (1922). — [19] HALBAN, H. V., u. L. EBERG: Z. Physik 14, 182 (1923). — [20] CARBUTHERS, G. H., u. T. HARRISON: Phil. Mag. 7, 792 (1929). — [21] KORTUM, G.: Phys. Z. 32, 427 (1931). — [22] SIMON, H., u. W. KLUGE: AEG-M. 27, 190 (1931). — [23] GÖRLICH, P.: Die Photozellen. Leipzig: Akademische Verlagsgesellschaft 1951. — [24] KLUGE, W., A. SCHULZ: Internat. Kongr. über Festkörperphysik, Brüssel 1958. — [25] SCHULZ, A.: Im Druck.

Prof. Dr.-Ing. WERNER KLUGE  
Institut für Gasentladungs-  
technik und Photoelektronik der T.H. Stuttgart

Dr.-Ing. ARNO SCHULZ  
Sindelfingen Kreis Böblingen, Lauterstr.

## Optische Reflexionsminderung durch Vergüten ohne Steigerung der Oberflächenrekombination bei Germanium-Photowiderständen

VON FRANZ RUDOLF KESSLER

Mit 3 Textabbildungen

(Eingegangen am 31. August 1960)

### Einleitung

Nicht in allen, aber in den meisten Fällen, in denen Halbleiter als Bauelemente in der Optik (speziell in der Ultrarotoptik) Verwendung finden, stellt der reflektierte Teil der auftretenden Strahlung einen unerwünschten Energieverlust dar. Da der Brechungsindex der Halbleiter naturgemäß groß ist, handelt es sich dabei um relativ große Beträge, z.B. bei Germanium ( $n=4$ ) um 36% an der Grenzfläche Luft—Germanium.

Im Durchlaßbereich der Halbleiter, hier z.B. bei Germanium, ist der Brechungsindex nur sehr schwach von der Wellenlänge abhängig. Dort ist auch der Absorptionsindex, selbst bei einer Dotierung bis zur Entartung, noch so klein, daß sein Beitrag in den Fresnelschen Formeln für das Reflexionsvermögen zu vernachlässigen ist im Gegensatz zu den Metallen.

Im Bereich der Absorptionskante steigt der Brechungsindex etwas an (bei Germanium auf maximal  $n=5,3$  bei  $0,8 \mu$ ), um zum Kurzwelligen hin stärker abzufallen. Hier ist die Beeinflussung des Reflexionsvermögens durch den Absorptionsindex und den Brechungsindex etwa von gleicher Größenordnung [1]. Versuche, das Reflexionsvermögen ( $R$ ) durch dünne aufgedampfte Schichten mit Hilfe der entstehenden Interferenzen, wenigstens spektral selektiv, herabzusetzen, haben zu vollem Erfolg geführt und sind hinreichend bekannt [2] bis [5], [9]. Denn zum Glück

gibt es Substanzen, deren Brechungsindex dem Idealfall für  $R=0$ , nämlich

$$n_{\text{Aufdampfschicht}} = \sqrt{n_{\text{Halbleiter}}},$$

sehr nahe kommen und die selbst vernachlässigbar absorbieren, sogar bis etwa  $10 \mu$ .

Bei Halbleiterbolometern stellt die Reflexionsverminderung sofort eine Steigerung der zugeführten Energie dar und damit eine Steigerung ihres Wirkungsgrades als Strahlungsempfänger.

Bei Halbleiterphotowiderständen und Halbleiterphotoelementen ist diese Steigerung nicht von vorne herein gegeben, da durch die Aufdampfschicht die Oberflächenrekombination erhöht werden kann. Die Oberflächenrekombination reagiert bekanntlich nicht nur sehr stark auf mechanische Beeinflussung der Oberfläche, sondern auch auf aufgebrauchte oder adsorbierte chemische Substanzen.

### Experimentelle Untersuchung

Um diese Frage zu klären, wurde ein Germaniumphotowiderstand mit  $\text{PbCl}_2$  bedampft im Sinne der Reduktion der Reflexionsverluste.  $\text{PbCl}_2$  kommt mit seinem  $n=1,9$  [4] der Idealbedingung (s. oben) sehr nahe. Abb. 1 zeigt den Faktor der Empfindlichkeitsänderung in einer spektralen Abhängigkeit. Das Ergebnis ist, daß nur in den Maxima, d.h. in den Nullstellen des Reflexionsvermögens, die alte Empfindlichkeit



heit erreicht wird. Aus dem Minimum bei  $0,86\mu$ , h. bei dem alten ungeänderten Reflexionsvermögen, ergibt sich, daß die Oberflächenrekombination um einen Faktor 3 zugenommen hat. Dies folgt aus der Rechnung, wenn bei der gegebenen Licht-Eindringtiefe von  $0,1\mu$ , die Probendicke größer als diese jedoch klein ist gegen die Diffusionslänge [6].

Im übrigen entspricht der spektrale Verlauf genau der bei dem gegebenen Brechungsindex zu erwartenden Vergütung. Die Zunahme der Minima und Maxima zu längeren Wellen hin erklärt sich aus der wachsenden Eindringtiefe des Lichtes. Die produzierten Elektronenloch-Paare werden damit wachsend dem Einfluß der Oberflächenrekombination entzogen.

Bei polaren Molekeln wie  $PbCl_2$  ist eine Zunahme der Oberflächenrekombination zu erwarten. Andererseits ist dann zu vermuten, daß Substanzen mit vorwiegend homöopolarer Bindung die Oberflächenrekombination weniger beeinflussen.

Abb. 2 zeigt den Faktor der Empfindlichkeitsänderung bei einer Bedampfung mit Selen<sup>1</sup>. Eingee-

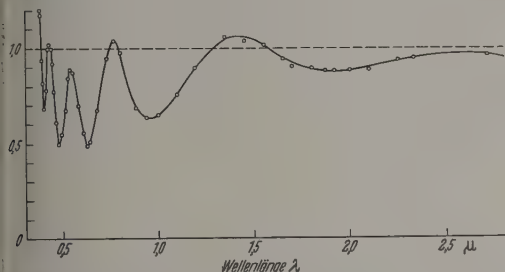


Abb. 1. Faktor der Empfindlichkeitsänderung eines Germanium-Photowiderstandes nach optischer Vergütung durch eine  $PbCl_2$ -Aufdampfschicht in Abhängigkeit von der Wellenlänge

zeichnet ist ferner der bei dem Brechungsindex von Selen (amorphe Modifikation) zu erwartende maximale Faktor bei theoretisch optimaler Vergütung<sup>2</sup> und ungeänderter Oberflächenrekombination.

Die Tatsache, daß dieser bei Selen optimale Wert fast genau erreicht wurde, zeigt, daß durch die Bedampfung mit Selen die Oberflächenrekombination nicht beeinflusst wurde. Damit erhält man an der gewünschten spektralen Stelle eine Empfindlichkeitssteigerung des Germanium-Photowiderstandes um fast 100%. Hier war diese Stelle absichtlich auf  $0,7\mu$  gelegt worden, um die totale Empfindlichkeit des Germanium-Photowiderstandes in den sichtbaren Spektralteil hinein anzuheben. Abb. 3 zeigt den spektralen Empfindlichkeitsverlauf vor (Maximum = 100% gesetzt) und nach der Vergütung mit Selen. In jüngster Zeit ist aus dem russischen Schrifttum ein ähnlicher Versuch an Silizium-Photoelementen mit  $SiO_2$ -Aufdampfschichten bekannt geworden, wo man eine Empfindlichkeitssteigerung von nur 25% erreicht hat [7].

#### Experimentelles Herstellungsverfahren

Germanium:  $\rho_{20^\circ C} = 50 \Omega cm$ , versetzungsarm, Diffusionslänge etwa 2 mm, Oberfläche geätzt mit Westinghouse-Silver-Etch der Zusammensetzung 45 Gew.-%

<sup>1</sup> Im Spektralteil B macht sich die beginnende Absorptionskante von Selen in einer Abnahme der Empfindlichkeit bemerkbar.

<sup>2</sup> Der Absorptionsindex von Ge nach [1] wurde dabei mit eingerechnet.

$HNO_3 + 10 \text{ Gew.-% } HF + 45 \text{ Gew.-% } H_2O + 60 \text{ mg } AgNO_3$  auf  $100 \text{ cm}^3$  dieser Lösung zur optimalen Herabsetzung der Oberflächenrekombination [8], danach gewaschen mit KCN-Lösung und konz. Alkohol.

Kontakte: galvanisch rhodiniert, unbeleuchtet. keine Photo-EMK vorhanden.

Aufdampfsubstanzen:  $PbCl_2$ , rein, Hersteller: E. Merck AG., Darmstadt; Selen: spektralrein, Hersteller: Johnson, Matthey u. Co., London.

Aufdampfung: im Vakuum besser  $7 \times 10^{-5}$  Torr, Aufdampfgeschwindigkeit klein (etwa 1 min), Abstand  $15 \text{ cm}$ .

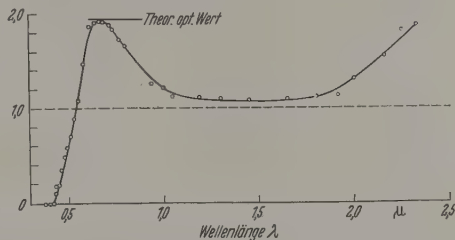


Abb. 2. Faktor der Empfindlichkeitsänderung eines Germanium-Photowiderstandes nach optischer Vergütung durch eine Selen-Aufdampfschicht in Abhängigkeit von der Wellenlänge

Spektrometer: Doppelmonochromator der Firma Leiss, Berlin; Anzeigeverfahren: 12 Hz intermittierende Meßstrahlung.

Vergleichsempfänger zu Abb. 3: kompensierte Thermo säule, Type E 4 der Firma Kipp & Zonen, Delft, ohne Fenster am gleichen Ort, Gleichlichtverfahren.

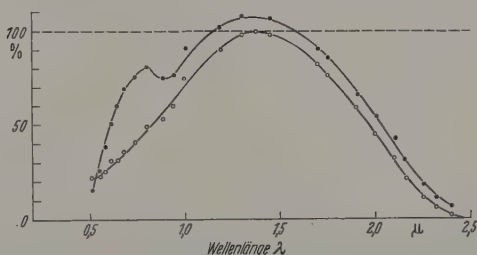


Abb. 3. Spektraler Empfindlichkeitsverlauf eines Germanium-Photowiderstandes vor (Maximum gleich 100% gesetzt) und nach der optischen Vergütung mittels Selen, wobei das Maximum der Vergütung absichtlich auf  $0,7\mu$  gelegt wurde, um eine Empfindlichkeitssteigerung im sichtbaren Spektralbereich zu erzielen

#### Zusammenfassung

Ein Germanium-Photowiderstand mit kleiner Oberflächenrekombination wurde einmal mit  $PbCl_2$  zur Reduktion der Reflexionsverluste optisch vergütet, ein anderes Mal mit Selen. Im ersten Fall nimmt die Oberflächenrekombination um den Faktor 2 zu, im zweiten Fall bleibt sie ungeändert, so daß im Vergütungsmaximum eine Empfindlichkeitssteigerung des Photowiderstandes um 100% erreicht wird.

Dem Institutsdirektor, Herrn Prof. Dr. C. von FRAGSTEIN, danke ich für die Stellung der experimentellen Hilfsmittel. Herrn cand. rer. nat. ERNST SUTTER danke ich für die Durchführung der Messungen.

Literatur: [1] BRATTAIN, W. H., and H. B. BRIGGS: Phys. Rev. **75**, 1705 (1949). — [2] BRIGGS, H. B.: Phys. Rev. **77**, 287 (1950). — [3] COX, J. T., and G. HASS: J. Opt. Soc. Amer. **47**, 1045 (1957). — [4] SMITH, S. D., and T. S. MOSS: J. Sci. Instrum. **35**, 105 (1958). — [5] HASS, G., u. A. F. TURNER, in:

M. AUWÄRTER, Ergebnisse der Hochvakuumtechnik und der Physik dünner Schichten. Stuttgart: Wiss. Verlagsgesellschaft 1957. — [6] Die Eindringtiefe ist im vorliegenden Fall klein gegen die Diffusionslänge der Überschußträger und auch klein gegen  $D/s$  (= Diffusionskonstante/Oberflächenrekombinationsgeschwindigkeit). Vergleiche dazu H. U. HARTEN u. W. SCHULTZ: Z. Physik 141, 319 (1955). — [7] MALOVETSKAYA,

V., V. S. VAVILOV i. G. N. GALKIN: Fiz. tverdogo Tela 1, 12 (1959). — [8] McKELVEY, J. P., and R. L. LONGINI: J. Appl. Phys. 25, 634 (1954). — [9] FRAGSTEIN, C. v., u. H. LAPPE: Ann. Univ. Sarav. Naturw.-Sci. 8, 1/2, 69 (1959).

Privatdozent Dr. FRANZ RUDOLF KESSLER,  
Institut für Experimentalphysik  
der Universität des Saarlandes, Saarbrücken

## Feldinduzierte und Einfallswinkel-Anisotropie in Nickel-Eisen-Schichten

VON ERNST FELDTKELLER

Mit 5 Textabbildungen

(Eingegangen am 24. August 1960)

### Einleitung

Werden Nickeleisenschichten in einem Magnetfeld aufgedampft, so erhalten sie eine uniaxiale magnetische Anisotropie, deren „leichte“ Achse in der Richtung des Magnetfeldes liegt. Trifft der Dampfstrahl beim Aufdampfen nicht genau senkrecht auf den Schichtträger, so ergibt sich ein zusätzlicher Anisotropiebeitrag, dessen leichte Richtung (bei einem Nickelgehalt von weniger als 90%) senkrecht zur Einfallsebene des Dampfstrahles liegt [1], [2]. Dieser Beitrag ist um so größer, je größer der Einfallswinkel des Dampfstrahles und je tiefer die Trägertemperatur ist [3], [4]. Er hängt in komplizierter Weise von der Schichtzusammensetzung ab [4]. Auf welchen Struktureigenschaften die „Einfallswinkel-Anisotropie“ beruht, ist in letzter Zeit vielfach diskutiert worden. In Frage kommen Einschlüsse oder Hohlräume von anisotroper Form [4], [5], Formanisotropie der Kristallite [3], [4], Agglomeration zu anisotropen Kristallgruppen [6] und Stapelfehler (unter Umständen mit eingebautem Sauerstoff) [4].

Die resultierende Ortsabhängigkeit der Anisotropieorientierung, der Anisotropiefeldstärke  $H_k$  und

an dieser Stelle nach Verkleinerung des Feldes von  $H > H_k$  bis auf Null die wiederholt beschriebene feine Domänenaufspaltung [8], [9]. ( $H_k$  ist die Feldstärke, die nötig ist, um den Magnetisierungsvektor aus der leichten in eine schwere Richtung zu drehen.) Beispiele für mit dem Faraday-Effekt erhaltene Bilder einer Schicht sind in Abb. 1 wiedergegeben. Durch Aufzeichnung des Ortes der Domänenaufspaltung in allen möglichen Feldrichtungen erhält man direkt Linien gleicher Anisotropieorientierung. Man kann so die Ortsabhängigkeit der Orientierung der magnetischen Anisotropie auf weniger als  $1^\circ$  genau ermitteln.

Die Ortsabhängigkeit der Anisotropiefeldstärke  $H_k$  läßt sich in derselben Apparatur auf 0,5 Oe genau durch folgendes Verfahren bestimmen: Man magnetisiert in einer schweren Richtung wie oben beschrieben, geht mit dem Feld auf Null und erhält eine Aufspaltungslinie, die in Abb. 2a noch einmal schematisch dargestellt sei.  $H_k$  möge hier von oben nach unten zunehmen. Nun wird in der entgegengesetzten Richtung ein Feld von willkürlicher Größe  $H$  angelegt und wieder abgeschaltet. An den Stellen, an denen dieses Feld  $H$  die lokale Astroide<sup>1</sup> überschritten hat,

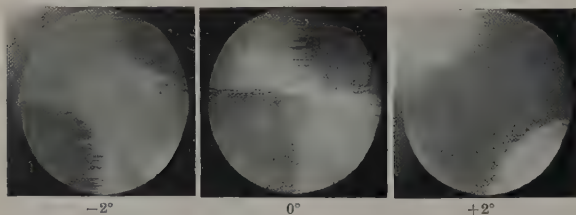


Abb. 1. Domängengrenzen in einer Schicht mit inhomogener Anisotropie nach Abschalten eines unter den angeschriebenen Winkeln gegen die mittlere schwere Richtung liegenden Feldes, sichtbar gemacht mit dem Faraday-Effekt. Leichte Richtung horizontal

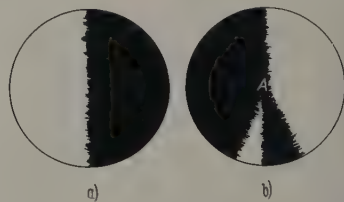


Abb. 2a u. b. a) Domängengrenzen nach Anlegen und Abschalten eines großen Feldes in einer schweren Richtung, entsprechend Abb. 1. b) Dieselbe Schicht nach Anlegen und Abschalten eines Feldes in der entgegengesetzten schweren Richtung, dessen Größe mit der Anisotropiefeldstärke im Punkt A übereinstimmt

der Wandkoerzitivkraft  $H_c$  innerhalb jeder einzelnen Schicht kann nun sichtbar gemacht werden nach einem Verfahren, das hier zunächst beschrieben werden soll.

### Meßmethode

In einer der üblichen Anordnungen zur Beobachtung der ferromagnetischen Domänen (hier wurde der Faraday-Effekt [7] benutzt) kann ein Magnetfeld in jede Richtung der Schichtebene gedreht und seine Größe variiert werden. Stimmt für irgendeine Stelle der Schicht die Feldrichtung gerade mit der lokalen „schweren“ Richtung überein, so zeigt sich

ist jetzt die Hell-Dunkel-Verteilung umgekehrt, was durch irreversible Drehprozesse dort die Magnetisierung in der jeweils entgegengesetzten leichten Richtung liegt als vorher (Abb. 2b). Für die Aufspaltungslinie selbst durchläuft das Gegenfeld gerade eine Astroide<sup>1</sup>spitze. In dem Ort der Aufspaltungslinie, für den die Feldstärke  $H$  gerade noch genügt, um die He-

<sup>1</sup> Die kritische Feldstärke für irreversible Drehprozesse. Die Abhängigkeit von der Feldrichtung hat die Form einer Astroide. Sie läßt sich aus Gleichgewichtsbetrachtungen zwischen Feldenergie und uniaxialer Anisotropie berechnen. Die Spitzen liegen auf der schweren und leichten Achse bei der Feldstärke  $\pm H_k$  [10], [11].



Dunkel-Verteilung umzukehren, stimmt deshalb die gewählte Feldstärke  $H$  gerade mit der lokalen Anisotropiefeldstärke  $H_k$  überein (Punkt  $A$  in Abb. 2b).

### Schichtherstellung

Die im folgenden besprochene Schicht wurde aus einer nahezu punktförmigen Verdampfungsquelle (kleiner  $\text{Al}_2\text{O}_3$ -Tiegel) bei Zimmertemperatur auf einen  $2,5 \times 6$  cm großen Glsträger kondensiert. Der Glsträger (mikroskopischer Objektträger) war in Flußsäure gereinigt und vor dem Bedampfen im Vakuum auf  $450^\circ\text{C}$  ausgeheizt. Quelle und Träger waren 20 cm voneinander entfernt. Das Vakuum betrug etwa  $10^{-8}$  Torr. Ein Helmholtz-Spulenpaar sorgte für ein homogenes Magnetfeld von 100 Oe. Der Nickelgehalt der  $480 \text{ \AA}$  dicken Schicht betrug  $(81,0 \pm 0,6)\%$ , bestimmt mittels Röntgenfluoreszenz.

### Ortsabhängigkeit der Anisotropie

Die Ortsabhängigkeit der Anisotropieorientierung in dieser Schicht ist in Abb. 3 und 4 in zwei verschiedenen Darstellungen abgebildet. Abb. 3 zeigt Linien gleicher Anisotropieorientierung. Parameter ist der Winkel zwischen der lokalen leichten Achse und der Richtung des äußeren Feldes bei der Schichtherstellung. Außerdem zeigt Abb. 3 Linien gleicher Anisotropiefeldstärke. Die Linien in Abb. 4 haben an jeder Stelle die Richtung der lokalen leichten Achse. Der Einfallswinkel ist in Abb. 4 eingetragen. Die Verdampfungsquelle lag 20 cm unter Punkt  $Q$ . In den Punkten  $P_1$  und  $P_2$  sind die von der Herstellung im Magnetfeld und vom Einfallswinkel herrührenden Anisotropien gleich groß, und ihre leichten Achsen stehen senkrecht aufeinander. Dadurch heben sich die Anisotropien beider Ursachen auf. Die Richtung in den übrigen Schichtteilen läßt sich entsprechend aus der Überlagerung beider Einflüsse qualitativ verstehen. Daß  $H_k$  in den Punkten  $P_1$  und  $P_2$  wirklich Null wird, läßt sich nach dem beschriebenen Verfahren nicht direkt nachweisen. Man kann dies aber aus dem Zusammentreffen der Linien verschiedener Anisotropieorientierung folgern.

In der Umgebung dieser Punkte hat man den von SMITH, HUBER, COHEN und WEISS [5] beschriebenen Fall, daß durch Kreuzung beider Anisotropiearten eine sog. Inversion  $H_k < H_c$  eintritt.

Abb. 4 entspricht etwa den Bildern von SMITH und RAFFEL [1], [12], die die mittlere leichte Richtung von einzelnen (im rotierenden Magnetfeld aufgedampften) Schichten bestimmten. Man sieht jedoch, daß unter Umständen in ein und derselben Schicht sämtliche Richtungen auftreten können, so daß eine Auswertung der mittleren Hysteresis einer solchen Schicht kaum noch sinnvoll ist.

### Ortsabhängigkeit der Wandkoerzitivkraft

Abb. 5 stellt die Ortsabhängigkeit der Wandkoerzitivkraft  $H_c$  in der jeweiligen leichten Richtung für dieselbe Schicht dar. Die Unsymmetrie läßt sich zum Teil auf einen Schichtdickengradienten zurückführen, der vielleicht von einer unsymmetrischen Lage des Schmelztropfens im Verdampfungstiegel herrührt. Die Schicht ist bei  $P_1$  etwa  $15 \text{ \AA}$  dicker als bei  $P_2$ . Da  $H_c$  von der Schichtdicke abhängt, ist das gesamte  $H_c$ -Relief etwas nach links geneigt.

Ein Zusammenhang zwischen  $H_c$  (Abb. 5) und der in Abb. 3 dargestellten Anisotropie ist offensichtlich.  $H_c$  nimmt mit zunehmendem Einfallswinkel zunächst ab und dann wieder zu, und zwar in unterschiedlicher

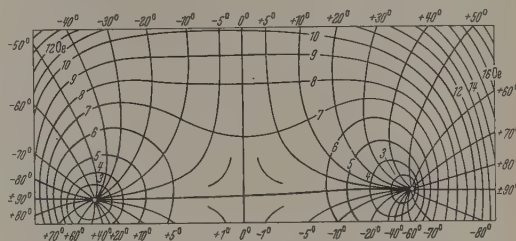


Abb. 3. Linien gleicher Anisotropieorientierung in einer Ni-Fe-Aufdampfschicht (Parameter: Winkel zwischen lokaler leichter Richtung und Magnetfeld bei der Herstellung) und Linien gleicher Anisotropiefeldstärke

Weise für verschiedene Winkel zwischen der Einfallsebene und dem Feld bei der Schichtherstellung.

Die Unstetigkeit von  $H_c$  in den Punkten  $P_1$  und  $P_2$  hängt damit zusammen, daß sich hier die Richtung,

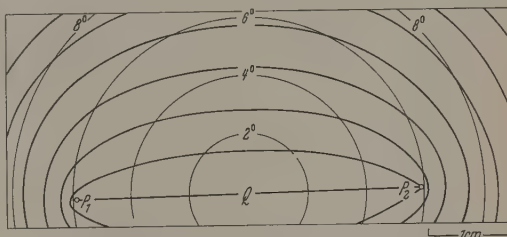


Abb. 4. Leichte Richtungen in derselben Ni-Fe-Aufdampfschicht (dicke Linien) und Einfallswinkel des Dampfstrahles (dünne Kreise). Die Verdampfungsquelle stand etwa 20 cm unter  $Q$

in der  $H_c$  gemessen wird (örtliche leichte Richtung), unstetig ändert. Da die Schicht bei der Herstellung einheitlich magnetisiert war, waren die Punkte  $P_1$  und  $P_2$  bei der Herstellung durch nichts ausgezeichnet.

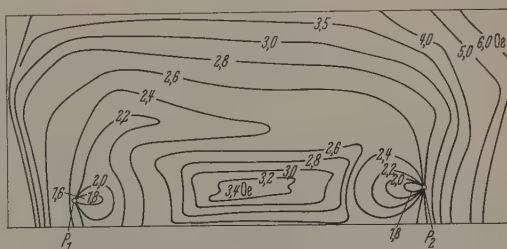


Abb. 5. Linien gleicher Wandkoerzitivkraft in der jeweiligen leichten Richtung für dieselbe Nichteisenschicht

Die Struktur der Schicht wird sich also in diesen Punkten nur ebenso stetig ändern wie an allen Stellen der Schicht. Wir haben dadurch hier eine seltene Gelegenheit, die Richtungsabhängigkeit der Wandkoerzitivkraft  $H_c$  in den Punkten  $P_1$  und  $P_2$  durch Umfahren dieser Punkte zu messen.

Man kann hier von einer Anisotropie hinsichtlich der Wandkoerzitivkraft  $H_c$  sprechen, an den Stellen der Schicht, die hinsichtlich der Magnetisierungsrichtung isotrop sind.

## Diskussion

Die Richtungsabhängigkeit von  $H_c$  in den Punkten, die bezüglich der Magnetisierungsrichtung isotrop sind, bedeutet ebenso wie die vieldeutige Abhängigkeit der Koerzitivkraft  $H_c$  von  $H_k$ , daß die beiden Anisotropiebeiträge (feldinduzierte und Einfallswinkel-Anisotropie) von verschiedener Natur sind, d.h. auf verschiedenen Struktureigenschaften beruhen müssen. Dadurch sind Stellen mit derselben Anisotropiefeldstärke nicht in allen magnetischen Eigenschaften gleich. Im Gegensatz hierzu ist bei der Überlagerung von feldinduzierter und Spannungsanisotropie nach MIDDELHOEK [13] der Zusammenhang zwischen  $H_c$  und  $H_k$  eindeutig für ein und dieselbe Schicht, auch wenn durch geeignete mechanische Verspannungen die leichte Achse (in der  $H_c$  gemessen wird) in verschiedene Richtungen gedreht wird. Dort ist also  $H_c$  unabhängig von der Art, wie sich  $H_k$  aus feldinduzierter und Spannungsanisotropie zusammensetzt.

Der Unterschied dürfte damit zusammenhängen, daß durch den Schrägeinfall des Dampfstrahles nicht nur eine zusätzliche homogene Anisotropie entsteht (die ihrerseits die Auswirkung von Richtungsschwankungen der Anisotropie auf  $H_c$  [13] beeinflusst), sondern daß hier zusätzlich Inhomogenitäten entstehen, die von der Größenordnung der Wanddicke sind und deshalb selbst als Haftstellen für Wände wirken können. SMITH, COHEN und WEISS [14] haben Kristallketten in schrägaufgedampften Schichten beobachtet, die dafür in Frage kommen. Durch sie wird  $H_c$  vor allem für solche Wände vergrößert werden, die parallel zu den Inhomogenitäten liegen, wodurch auch die Richtungsabhängigkeit von  $H_c$  verständlich wird.

Nimmt man an, daß die Einfallswinkel-Anisotropieenergie die Form  $K(\psi) \cos^2(\varphi - \varphi_0)$  hat ( $\psi$  = Einfallswinkel,  $\varphi_0$  = Winkel zwischen Einfallsebene und Feld bei der Herstellung), so enthält Abb. 3 kleine systematische Abweichungen von der unabhängigen Überlagerung der beiden Anisotropiebeiträge. Das würde durch eine Wechselwirkung zwischen beiden erklärbar sein.

## Zusammenfassung

Ein Verfahren zur Bestimmung der Ortsabhängigkeit der Anisotropieorientierung und der Anisotropiefeldstärke innerhalb einer Nickel-eisenschicht mit Hilfe des magneto-optischen Faraday-Effektes wird beschrieben. Es wurde auf Schichten angewandt, die bei Zimmertemperatur in einem homogenen Magnetfeld aufgedampft waren. Man erhält so eine Überlagerung von Einfallswinkel-Anisotropie und feldinduzierter Anisotropie mit zwei Punkten, in der Umgebung die magnetische Vorzugsachse in sämtlichen möglichen Richtungen liegt. Ebenfalls mit dem Faraday-Effekt wurde die Ortsabhängigkeit der Wandkoerzitivkraft gemessen. Es ergibt sich ein komplizierter Zusammenhang mit der Einfallrichtung des Dampfstrahles. Vor allem kann auf eine Richtungsabhängigkeit der Wandkoerzitivkraft an den Stellen an denen die Magnetisierungsenergie richtungsunabhängig ist, geschlossen werden.

**Literatur:** [1] SMITH, D.O.: J. Appl. Phys. **30**, Suppl. 264 S. (1959). — [2] KNORR, T.G., and R.W. HOFFMAN: Phys. Rev. **113**, 1039 (1959). — [3] PUGH, E.W., J. MATISCH, D.E. SPELIOTIS and E.L. BOYD: J. Appl. Phys. **31**, Suppl. 293 S. (1960). — [4] PUGH, E.W., E.L. BOYD and J.F. FREEMAN: IBM-J. **4**, 163 (1960). — [5] SMITH, D.O., E.E. HUBER, M.S. COHEN and G.P. WEISS: J. Appl. Phys. **31**, Suppl. 295 S. (1960). — [6] COHEN, M.S., E.E. HUBER, G.P. WEISS and D.O. SMITH: J. Appl. Phys. **31**, Suppl., 291 S. (1960). — [7] FOWLER, C.A., and E.M. FRYER: Phys. Rev. **104**, 5 (1956). — [8] OLSON, C.D., and A.V. POHM: J. Appl. Phys. **29**, 274 (1958). — [9] PROEBSTER, W.E., S. METHFESSEL and C.O. KINBERG: Information Processing, Proc., Oldenbourg Verlag München 1960, S. 439. — [10] SMITH, D.O.: J. Appl. Phys. **29**, 264 (1958). — [11] PROEBSTER, W.E.: Elektrische Rechenanlagen **1**, 164 (1959). — [12] RAFFEL, J.I., and D. SMITH: Information Processing, Proc., Oldenbourg Verlag München 1960, S. 447. — [13] MIDDELHOEK, S.: Z. angew. Phys. **13**, H. 3 (1961). — [14] SMITH, D.O., M.S. COHEN and G.P. WEISS: J. appl. Phys. **31**, 1755 (1960).

Dr. ERNST FELDTKELLER,

Forschungslaboratorium der Siemens & Halske AG., München

## Über eine feldstärkeabhängige Verschiebung der Äquipotentiallinien in flüssigen polaren Dielektrika im inhomogenen elektrischen Feld

Von GÜNTHER H. KRAWINKEL und HANS-JOACHIM ZETZMANN

Mit 11 Textabbildungen

(Eingegangen am 28. September 1960)

Die Theorie der Strömung flüssiger polarer Dielektrika in inhomogenen elektrischen Feldern [1] läßt eine Verschiebung der Äquipotentiallinien innerhalb des polaren Dielektrikums im inhomogenen Feldraum gegenüber der Lage dieser Linien im Vakuumfeld erwarten. Mit vorliegender Arbeit wird über die Ergebnisse einer ersten experimentellen Untersuchung dieser Frage berichtet.

Den Versuchen zugrunde gelegt wurde ein Zylinderkondensator mit Potentialsonde, wie er in Abb. 1 dargestellt ist. Die Baumaße sind der Unterschrift zu entnehmen. Durch zwei Teflonscheiben  $T$  werden die beiden Zylinderelektroden  $Z_i$  und  $Z_a$  zentrisch zueinander gehalten. Im Raum zwischen den beiden Elektroden ist die Potentialsonde  $S$  angeordnet, die

aus sechs parallel zu den Erzeugenden der Elektrodenflächen gespannten Drähten besteht, die gleichmäßig auf einem Kreis vom Radius  $r_0$  verteilt sind. Die Stärke der Cu-Sondendrähte beträgt 0,13 mm. Die Führungslöcher für die Sondendrähte in den Teflonplatten haben einen Durchmesser von 0,2 mm. Die unteren und oberen Teflonplatte befindet sich exzentrisch je eine kleine Öffnung zum Innenraum hin, die der Füllung bzw. Entlüftung des Kondensators dienen.

Dieser Meßkondensator befand sich während der Messungen in einem auf nahezu konstanter Temperatur gehaltenen Standgefäß (Temperaturschwankung während einer Meßreihe  $< 0,2^\circ \text{C}$ ), das jeweils mit einem polaren Dielektrikum gefüllt wurde. Diese waren



Propylchlorid, Äthylchlorid, o-Dichlorbenzol und ein flüssiges Gemisch bestehend aus 52,6 Vol.-% Dichlorbenzol + 47,4 Vol.-% Nitrobenzol.

In einer Schaltung nach Abb. 2 wurden nun für verschiedene Potentialdifferenzen zwischen den Elektroden  $Z_i$  und  $Z_a$  des Meßkondensators  $M$  die einzelnen Elektrodenpotentiale  $V_1$  und  $V_2$  bestimmt, bei denen sich an der Sonde das Potential Null einstellte. In diese Potentialeinstellung wurde jeweils auch der Strom  $J$ , der durch den Kondensator fließt sowie dessen Kapazität  $C$  gemessen. Die Meßanordnung wurde aus einem sekundärseitig ungeerdeten Hochvakuum-Gleichrichter (0 bis 15 kV =) gespeist, der auf den in Abb. 2 dargestellten Spannungsteiler  $Sp$  arbeitete. Zwischen zwei Abgriffen, von denen eine größere Anzahl gleichmäßig über  $Sp$  verteilt ist, ist, wie in Abb. 2 dargestellt, ein stetig veränderliches Potentiometer (Helipot) geschaltet, dessen Mittelabgriff an Erde liegt. Die Enden des Spannungsteilers sind über die Schichtwiderstände  $R_1 = 0,96 \times 10^5 \Omega$  und  $R_2 = 10^5 \Omega$  und den Strommesser  $J$  an die Innen- und Außenelektrode des Meßkondensators gelegt. Die Potentialsonde im Meßkondensator ist über ein Quadrantenelektrometer der Firma Siemens Halske in idiostatischer Schaltung gegen Erde gelegt. In den Elektroden des Meßkondensators ist des weiteren über hochisolierende Keramik-Plattenkondensatoren  $C^*$  (5100 pF) und  $C^{**}$  (4890 pF) ein objektiv anzeigender Kapazitätsmesser  $\odot$  der Firma Rohde & Schwarz angeschlossen. Bei den Kapazitätsmessungen wurde die Potentialsonde an der durch eine doppelte Schlangenlinie in Abb. 2 gekennzeichneten Stelle jeweils von der Schaltung abgetrennt<sup>1</sup>.

Die Messungen erfolgten im einzelnen derart, daß bei veränderlichen Spannungswerten  $V$  zwischen 0 und 8000 V maximal der geerdete Mittelabgriff des Potentiometers am Spannungsteiler  $Sp$  solange verfahren wurde, bis das Quadrantenelektrometer an der Potentialsonde keinen Ausschlag mehr zeigte. Am Quadrantenelektrometer war dabei selbst bei Feldstärkewerten in der Größenordnung von 20000 V/cm im Meßkondensator noch eine Einstellgenauigkeit von  $< 1$  V möglich. Schwierigkeiten bei der Einstellung traten durch stoßweise Netzschwankungen auf, auf die wohl auch eine gewisse Streuung der weiter unten mitgeteilten Meßwerte zurückgeführt werden kann. Dies kann deshalb angenommen werden, weil eine Potentialkurve (Abb. 4, Kurve ②), die bei „ruhigem“ Netz gemessen werden konnte, kaum Streuung der Meßwerte zeigt. Bei jeder Null-Einstellung des Sondenpotentials wurden an den Meßinstrumenten die Spannungen  $V_1^*$ ,  $V_2^*$  und der Strom  $J$  abgelesen, woraus die an den Elektroden des Meßkondensators gegen Erde liegenden Potentiale

$$|V_1| = |V_1^*| - |J| \cdot R_1$$

$$|V_2| = |V_2^*| - |J| \cdot R_2$$

ermittelt wurden.

Für jede der oben genannten polaren dielektrischen Substanzen wurden bei steigenden und fallenden Spannungswerten  $V$  eine Anzahl der vorerkärten

<sup>1</sup> Für die Möglichkeit der Durchführung der Messungen im Institut für Flugfunk und Mikrowellen, Oberpfaffenhofen und die entgegenkommende Bereitstellung von Meßgeräten sprechen wir hiermit der Deutschen Versuchsanstalt für Luftfahrt e.V. unseren besonderen Dank aus. Die Verfasser.

Meßpunkte ermittelt, die in den wiedergegebenen Meßkurven (Meßwerte jeweils durch  $\circ$  und  $\bullet$  gekennzeichnet) in elektrostatische Einheiten umgerechnet ( $300 \text{ V} = 1 \text{ ESE}$ ), eingetragen sind. Die Kurven zeigen dabei den funktionalen Zusammenhang von  $V_1 + V_2$  mit  $V_1 - V_2$ . Diese Darstellung der Abhängigkeit wurde gewählt, da sie für theoretische Überlegungen den formal einfachsten Zugang ermöglicht. Zu beachten ist nur, daß  $V_1$  und  $V_2$  die Potentialwerte der Elektroden  $Z_i$  und  $Z_a$  einschließlich ihres Vorzeichens sind. Für ein negatives  $V_1$ -Potential und ein positives  $V_2$ -Potential, d.h. für ein von innen nach außen gerichtetes Feld, wird so  $V_1 - V_2$  z.B. eine negative Größe und  $V_1 + V_2$  wird negativ wenn dabei  $|V_1| > |V_2|$ .

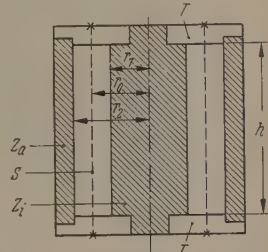


Abb. 1. Meßkondensator,  $r_1 = 0,8 \text{ cm}$ ,  $r_2 = 1,2 \text{ cm}$ ,  $h = 4 \text{ cm}$

Für die oben aufgeführten dielektrischen Substanzen wurden jeweils Meßreihen in beiden Polarungen durchgeführt; d.h. sowohl für ein von innen nach außen im Zylinderkondensator gerichtetes Feld

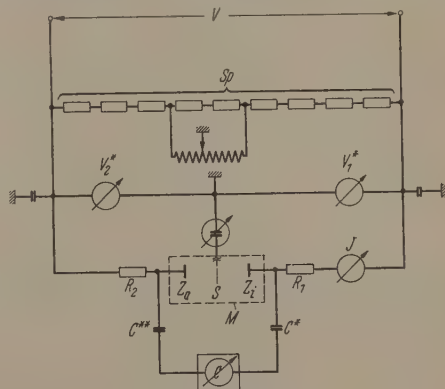


Abb. 2. Meßschaltung

(Bezeichnung  $V_1^-, V_2^+$ ), wie auch für ein von außen nach innen gerichtetes Feld (Bezeichnung  $V_1^+, V_2^-$ ). Für jeden Meßpunkt, d.h. nach jeder Sonden-Potentialeinstellung auf 0, wurde die Verbindung zwischen Sonde und Schaltung unterbrochen und mit dem Kapazitätsmesser  $\odot$  die Kapazität des Meßkondensators bei der jeweils an ihm liegenden Potentialdifferenz bestimmt. Die absolute Meßgenauigkeit des Kapazitätsmessers in dem verwendeten Meßbereich betrug 0,2 pF. Die Kapazität des leeren Kondensators in der Schaltung wurde mit 29,5 pF gemessen. Die Berechnung der Kapazität des leeren Zylinderraumes des Meßkondensators ergibt (ohne Berücksichtigung von Randfeldern) 5,48 pF. Die Kapazität  $C$  des gefüllten Zylinderkondensatorraums ergibt sich demnach aus einem Meßwert  $C'$  zu:

$$C = C' - (29,5 - 5,48) = C' - 24,02 \text{ pF}.$$

Und hieraus der Wert der Dielektrizitätskonstante des jeweiligen Dielektrikums:

$$\epsilon_m = \frac{C}{5,48} = \frac{C' - 24,02}{5,48}.$$

Bevor die vorbesprochenen Messungen an den polaren dielektrischen Substanzen durchgeführt wurden, wurde der Meßkondensator zur Prüfung der An-

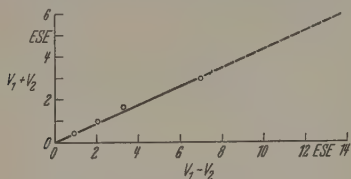
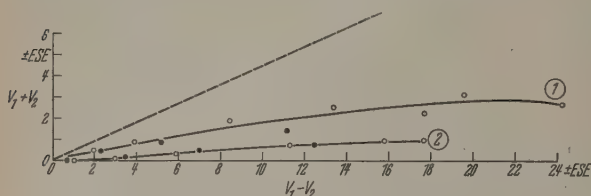
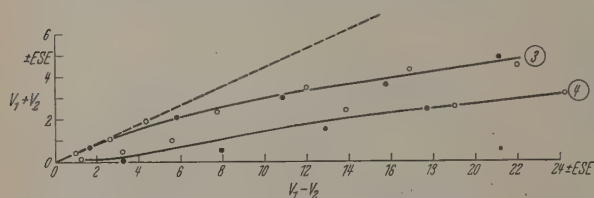
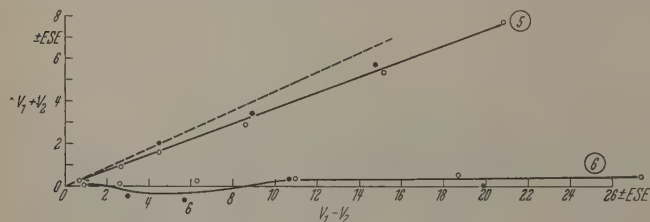


Abb. 3. Potentialkurve des Benzols

ordnung mit analysenreinem (kristallisierbarem) Benzol gefüllt. Die Leitfähigkeit des Benzols war dabei aber so gering, daß die Einstellung des Quadranten-

Abb. 4. Potentialkurven von n-Propylchlorid ①  $V_1^+$ ,  $V_2^-$ ; ②  $V_1^-$ ,  $V_2^+$ ;  $t=21^\circ\text{C}$ Abb. 5. Potentialkurven von Äthylchlorid ③  $V_1^+$ ,  $V_2^-$ ; ④  $V_1^-$ ,  $V_2^+$ ;  $t=9^\circ\text{C}$ 

elektrometers, dessen Eigenkapazität über die Leitfähigkeit des Dielektrikums im Meßkondensator bis zur Erreichung des Nullpotentials umgeladen werden

Abb. 6. Potentialkurven von o-Dichlorbenzol ⑤  $V_1^+$ ,  $V_2^-$ ; ⑥  $V_1^-$ ,  $V_2^+$ ;  $t=20^\circ\text{C}$ 

muß, unverhältnismäßig lange dauerte. Zur Erhöhung der Leitfähigkeit wurde das Benzol deshalb durch Zusatz von 0,5 Vol.-% einer gesättigten Lösung von p-Nitrotoluol in o-Dichlorbenzol verunreinigt, worauf das Nullpotential an der Sonde in angemessener Zeit (4–5 min pro Meßpunkt) einstellbar wurde. Die Ergebnisse der Benzolmessung sind in Abb. 3 wiedergegeben. Sie streuen um eine Gerade durch den Nullpunkt, die dem logarithmischen Potential im Feldraum für den Zusammenhang von  $V_1 + V_2$  mit  $V_1 - V_2$  entspricht. Mit Hilfe dieser Geraden ist die örtliche Lage der Sonde im Feldraum zu bestimmen. Für das log-Potential im unbegrenzt ausgedehnten Zylinderkondensator gilt  $p_v = A \cdot \ln r + B$ .

Das heißt:

$$V_1 = A \cdot \ln r_1 + B$$

$$V_2 = A \cdot \ln r_2 + B$$

oder

$$p_v(r) = \frac{1}{2} \cdot (V_1 + V_2) - \frac{V_1 - V_2}{\ln \frac{r_2}{r_1}} \cdot [\ln r - \ln \sqrt{r_1 \cdot r_2}]$$

Da an der Stelle der Sonde ( $r=r_0$ ) nun die Äquipotentiallinie Null verläuft, ergibt sich

$$0 = \frac{1}{2} \cdot (V_1 + V_2) - \frac{V_1 - V_2}{\ln \frac{r_2}{r_1}} \cdot [\ln r_0 - \ln \sqrt{r_1 \cdot r_2}]$$

Das heißt:

$$r_0 = \sqrt{r_1 \cdot r_2} \cdot e^{\frac{1}{2} \cdot \frac{V_1 + V_2}{V_1 - V_2} \cdot \ln \frac{r_2}{r_1}}$$

Nach obigen Konstruktionsangaben ist  $r_2/r_1 = 1,5$ ;  $r_1 \cdot r_2 = 0,96$  und nach Abb. 3

$$\frac{V_1 + V_2}{V_1 - V_2} = 0,436$$

Damit wird:

$$r_0 = \sqrt{0,96} \cdot e^{0,218 \cdot \ln 1,5}$$

$$r_0 = 1,070$$

Der Bauauftrag hatte gelaute, die gespannten Sondendrähte auf einem Kreis mit dem Halbmesser 1 cm gleichmäßig zu verteilen. Für die Abweichung zwischen Bauauftrag und elektrischem Meßwert von  $r_0$  kann sowohl ein Verlaufen des 0,2 mm-Bohrers in dem weichen Teflonmaterial, als auch eine gegenseitige kapazitive Wirkung der Anschlußdrähte des Meßkondensators verantwortlich sein.

In Abb. 4 sind die oben beschriebenen Messungen von  $V_1 + V_2$  über  $V_1 - V_2$  für n-Propylchlorid eingetragen und zwar Kurve ① für  $V_1^+$ ,  $V_2^-$  und Kurve ② für  $V_1^-$ ,  $V_2^+$ . Es bedeuten jeweils die kleinen Kreise die Meßwerte bei steigender Spannung und die Punkte die Meßwerte bei fallender Spannung. Abb. 5 bis 7 zeigen das gleiche für Äthylchlorid (Kurven ③ und ④), o-Dichlorbenzol (Kurven ⑤ und ⑥) und die oben angegebene Anlagerungsverbindung (Kurve ⑦).

Charakteristisch für alle Potentialkurven der gemessenen polaren Dielektrika ist zunächst, daß die Einstellung der Äquipotentiallinie Null am Ort der Sonde nur mit Randpotentialwerten gelingt, die zum Teil nennenswert von den der logarithmischen Potentialverteilung entsprechenden Randpotentialen abweichen. Das heißt, daß in den gemessenen polaren Dielektrika im Feldraum keine logarithmische Potentialverteilung vorliegt. Die Abweichung von der logarithmischen Potentialverteilung ist dabei zum Teil erheblich. Betrachtet man z.B. n-Propylchlorid Kurve ②, Abb. 4, für die Potentialdifferenz  $V_1 - V_2 = 10$  ESE, so gehört hierzu nach logarithmischer Potentialverteilung  $(V_1 + V_2)_{\log} = -4,45$  ESE, während für das polare Dielektrikum  $(V_1 + V_2)_{\text{pol}} = -0,65$  ESE ist. Das heißt, in diesem Fall entsteht am Sondenort ( $r=r_0$ ) im Zylinderfeld die Äquipotentiallinie Null



n-Propylchlorid bei

$$V_{1\text{pol}} = -5,325 \text{ ESE} = -1597,5 \text{ V}$$

$$V_{2\text{pol}} = +4,675 \text{ ESE} = +1402,5 \text{ V}$$

gegenüber den Werten bei logarithmischer Potentialverteilung

$$V_1^{\text{log}} = -7,225 \text{ ESE} = -2167,5 \text{ V}$$

$$V_2^{\text{log}} = +2,775 \text{ ESE} = +832,5 \text{ V.}$$

Bei den betrachteten 3000 V Potentialdifferenz verhalten sich also im inhomogenen Zylinderfeld die Äquipotentiallinien zwischen Sonde und Außenelektrode in n-Propylchlorid gegenüber der logarithmischen Potentialverteilung auf das rund 1,7fache, während zwischen Sonde und Innenelektrode eine Verringerung der Äquipotentialliniendichte auf den rund 0,74fachen Wert des log-Potentials stattfindet. Bei o-Dichlorbenzol (Kurve ⑥, Abb. 6) sind die Verhältnisse noch ausgeprägter.

Diese starke Verschiebung der Äquipotentiallinien in polaren Dielektrika im inhomogenen Feldraum ist weder durch den Debyeschen Sättigungseffekt [2] noch durch Elektrostriktion, wie sie z. B. durch F. H. FÜLLER [3] sowohl für die Verschiebung polarer Molekel als auch für die Quadrupolbildung im inhomogenen Feld abgeleitet wurde, erklärbar. Beide Effekte gegen um mehrere Größenordnungen unter der hier auftretenden Änderung der Äquipotentialliniendichte. Wie an anderer Stelle gezeigt wird, kann hingegen eine Erklärung für diese Äquipotentiallinien-Verschiebung in der Annahme von Raumladungen in den Grenzschichten des polaren Dielektrikums mit den Elektroden gefunden werden.

Ein zweites Charakteristikum der in den polaren Dielektrika gemessenen  $V$ -Kurven der Abb. 4 bis 7 liegt in dem sehr typischen Auseinanderfallen jeweils der beiden Kurven einer Substanz für die beiden Feldrichtungen. Da bei den starken polaren Momenten der Einfluß feldrichtungsabhängiger Quadrupolmomente den Unterschied der jeweiligen Meßkurven in den beiden Feldrichtungen nicht zu erklären vermag, ist die Ursache für diese Erscheinung möglicherweise ein feldrichtungsabhängiger Verschiebung des Assoziatengleichgewichts im inhomogenen Feld und einer sich daraus ergebenden feldrichtungsabhängigen Änderung der Volumenpolarisation zu suchen. (Siehe hierzu auch die Schlußbemerkungen in [4].)

Ein drittes Charakteristikum der gemessenen  $V$ -Kurven ist ihr im allgemeinen gekrümmter Verlauf über der am Meßkondensator liegenden Potentialdifferenz. Das heißt, die Verschiebung der Äquipotentiallinien ist nichtlinear feldstärkeabhängig, bzw. nichtlinear abhängig vom Polarisationszustand.

Weitere Aufschlüsse über das Verhalten polarer Dielektrika im inhomogenen Feld sind aus dem Verlauf des Stromes  $J$  in Abhängigkeit von der angelegten Potentialdifferenz zu gewinnen. Die Abb. 8 und 9 zeigen mit den Kurven ① bis ⑦ in gleicher Substanz- und Feldrichtungs-Bezeichnung wie in den Abb. 4 bis 7 die Ströme  $J$ . Die Ablesung der Stromwerte hat dabei jeweils erst längere Zeit (mehrere Minuten) nach der Spannungseinstellung stattgefunden. Die Stromkurven werden, abgesehen von kleinen Differenzen zwischen Hin- und Rückgang (steigende Spannung und fallende Spannung), deren Ursachen hier

noch nicht weiter verfolgt wurden, reversibel durchlaufen.

Gemeinsames Kennzeichen aller Stromkurven ist offenbar ein von der angelegten Potentialdifferenz

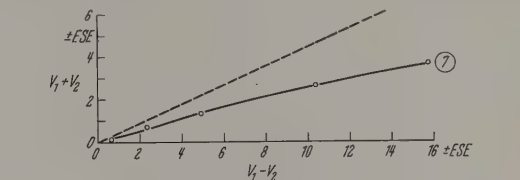


Abb. 7. Potentialkurve eines flüssigen Gemischs, bestehend aus 52,6 Vol.-% o-Dichlorbenzol + 47,4 Vol.-% Nitrobenzol. ⑦  $V_1$ ,  $V_2$ ;  $t = 22^\circ \text{C}$

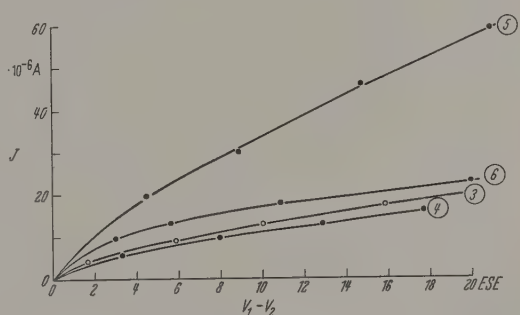


Abb. 8. Strom-Spannungs-Charakteristiken zu den Potentialkurven der Abb. 5 und 6

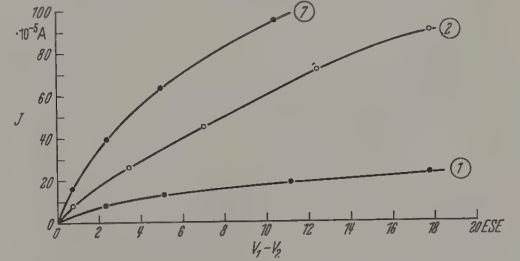


Abb. 9. Strom-Spannungs-Charakteristiken zu den Potentialkurven der Abb. 4 und 7

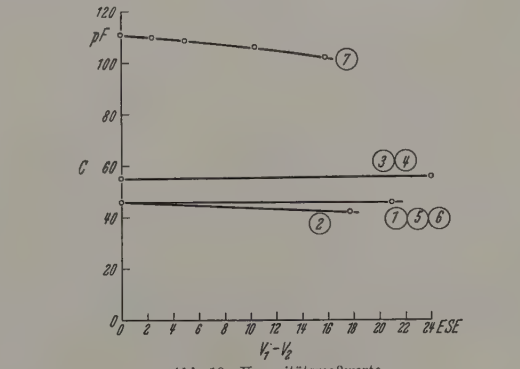


Abb. 10. Kapazitätsmeßwerte

nichtlinear abhängiges Zurückbleiben der Ströme gegenüber den vom Ohmschen Gesetz verlangten linearen Stromzunahmen, die den Tangenten an die Meßkurven im Ursprung des Koordinatensystems entsprechen würden. Eine Erklärung für diesen Verlauf aller gemessenen Stromkurven kann wieder in der Bildung von Raumladungen in den Grenzschichten von

polarem Dielektrikum und metallischen Elektroden gefunden werden. Raumladungen, die vom Polarisationszustand abhängen und den Stromübergang zwischen den Elektroden mit wachsender Polarisation zunehmend hemmen. In einer in Vorbereitung befindlichen Arbeit des erstgenannten Verfassers, „Zur Theorie der Äquipotentiallinien-Verschiebung in polaren Dielektrika im inhomogenen elektrischen Feld“, wird die Vereinbarkeit solcher Grenzschicht-Raumladungen in polaren Dielektrika mit der Maxwell'schen Theorie der Elektrostatik gezeigt und einige der sich daraus ergebenden Folgerungen abgeleitet.

In Abb. 10 sind die Ergebnisse der oben beschriebenen Kapazitätsmessungen eingetragen. Da diese

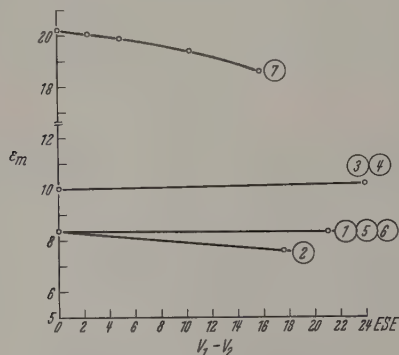


Abb. 11. Mittlere Dielektrizitätskonstanten

Messungen mit einer Frequenz von rund  $10^5$  Hz durchgeführt wurden, liegt die Korrektur, die an den gemessenen Kapazitätswerten zufolge der parallel geschalteten Widerstände usw. vorzunehmen wäre, unter 0,7%. Da diese Korrektur an die absolute Ablesegenauigkeit heranreicht, ist hier auf sie verzichtet worden. Wegen der geringen Meßwert-Änderung sind bei den Kurven ① bis ⑥ jeweils der erste und der letzte Meßwert durch eine gerade Linie verbunden, während bei Kurve ⑦ alle Meßwerte eingetragen sind. Wie aus Abb. 10 hervorgeht, bleibt die Kapazität bei den polaren Substanzen (bzw. Feldrichtungen) ①, ⑤, ⑥ konstant. Bei ③ und ④ steigt sie von 0 bis 20 ESE etwa um 1,5% an und bei ② und ⑦ fällt die Kapazität um rund 8 bzw. 9%.

Die Umrechnung auf DK-Werte  $\epsilon_m$  nach obiger Formel ist in Abb. 11 dargestellt. Es sei erwähnt, daß der hier ermittelte Wert von  $\epsilon_m$  für Äthylchlorid bei der Potentialdifferenz 0 nur um 0,5% von dem von C.V. RAMAN und K.S. KRISHNAN in einer Arbeit über den Kerr-Effekt [5] angegebenen Wert 9,96 für diese Substanz abweicht.

Die auftretenden Änderungen der mittleren DK des polaren Dielektrikums im inhomogenen Feldraum mit der Potentialdifferenz am Meßkondensator können

wegen größenordnungsmäßiger Unterschiede wieder nicht durch dielektrische Sättigung [2] oder Elektrizitätsstruktion [3] erklärt werden, zumal für letztere unter anderen von H.A. POHL [6] errechneten Verschiebungszeiten für die Molekel nicht zur Verfügung standen. Hingegen ermöglicht die oben vermutete Raumladungsbildung in den Grenzschichten die Annahme einer örtlich veränderlichen DK in polaren Dielektrika im inhomogenen Feld, deren Mittelwert dann hier nur gemessen wurde. Eine solche Annahme hinsichtlich der DK steht auch mit der beobachteten Verschiebung der Äquipotentiallinien in Übereinstimmung.

Eine direkte örtliche DK-Bestimmung in polaren Substanzen im inhomogenen Feld bleibt einer besonderen experimentellen Untersuchung vorbehalten.

### Zusammenfassung

In einem Zylinderkondensator mit Potentialsonde im Feldraum werden für eine Anzahl polarer Dielektrika bei veränderlichen Feldstärken die Randpotentialwerte bestimmt, bei denen durch den Ort der Sonde die Äquipotentiallinie Null verläuft. Hier zeigen sich von der dielektrischen Substanz und der Feldstärke abhängende, zum Teil erhebliche Abweichungen vom log-Potentialverlauf im inhomogenen Zylinderfeld. Der durch das Dielektrikum fließende Strom bleibt dabei in allen gemessenen Substanzen bei wachsender Potentialdifferenz in charakteristischer Weise gegenüber dem vom Ohmschen Gesetz verlangten linearen Anstieg der Strom-Spannungs-Kurve zurück. Die gleichzeitig gemessene Kapazität des Kondensators zeigt für Äthylchlorid in beiden Feldrichtungen eine Kapazitätszunahme mit wachsender Potentialdifferenz, für o-Dichlorbenzol Kapazitätskonstanz in beiden Feldrichtungen, für n-Propylchlorid in einer Feldrichtung Kapazitätskonstanz und in der anderen Feldrichtung Kapazitätsabnahme. In der gesamten Erscheinungen lassen, neben einer feldrichtungsabhängigen Verschiebung des Assoziationsgleichgewichts im inhomogenen Feld, das Vorhandensein von Raumladungen in den Grenzschichten des polaren Dielektrikum und Elektroden vermuten.

**Literatur:** [1] KRAWINKEL, G.H.: Z. angew. Phys. 305—315 (1959). — [2] DEBYE, P.: Theorie der elektrischen und magnetischen Molekulareigenschaften. In Handbuch der Physik, Bd. VI, S. 779—780 (1925). — [3] MILLER, F.H.: Wiss. Veröff. Siemens-Werke 17, 20—37 (1938). [4] KRAWINKEL, G.H.: Z. angew. Phys. 12, 525—527 (1960). [5] RAMAN, C.V., and K.S. KRISHNAN: Phil. Mag. 19, 724—735. — [6] POHL, H.A.: a) J. Appl. Phys. 22, 869—874 (1951). — b) J. Appl. Phys. 29, 1182—1188 (1958).

Dr.-Ing. GÜNTHER H. KRAWINKEL,  
Frankfurt a. M.-Eschersheim, Haaberlinstraße 5a

Dr.-Ing. HANS-JOACHIM ZETZMANN,  
Weßling/Obb., Obere Seefeldstraße 21



## Über das spontane Auftreten von Unstetigkeiten bei der schleichenden Strömung zweier zäher Flüssigkeiten durch ein poröses Medium

Von GEORG MANDL und JAN H. KRUIZINGA

Mit 10 Textabbildungen

(Eingegangen am 24. September 1960)

### 1. Einleitung

Gegenstand der vorliegenden Arbeit ist die schleichende Strömung zweier nicht mischbarer, zäher und inkompressibler Flüssigkeiten durch ein poröses Medium. Um zu einer mathematischen Beschreibung dieser Strömung zu gelangen, ist es naheliegend, zunächst die stationäre Strömung einer homogenen, zähen Flüssigkeit durch ein poröses Medium zu betrachten.

Unter einem porösen Medium wollen wir im folgenden ein starres Festkörperskelett verstehen, welches im makroskopischen Sinne homogen und isotrop ist und auf die Flüssigkeit lediglich hydrodynamische Reaktionskräfte ausübt. Die Flüssigkeit selbst ströme langsam durch die Poren des porösen Körpers, daß die Beschleunigungskräfte gegenüber den viskösen Reibungskräften vernachlässigt werden dürfen (Zahl von REYNOLDS  $Re \ll 1$ ). Weiter möge das „makroskopische“ Geschwindigkeitsfeld, welches man durch Mittelung des in den Poren herrschenden „mikroskopischen“ Geschwindigkeitsfeldes erhält, ein Parallelfeld sein. Die Makroströmung soll also überall parallel zu einer, als  $x$ -Achse ausgezeichneten Geraden erfolgen. Unter diesen Voraussetzungen gilt dann das makroskopische Strömungsgesetz von D'ARCY [1]:

$$V = - \frac{k}{\eta} \frac{dP}{dx} \quad (1)$$

Hierin bedeutet die „Filtergeschwindigkeit“  $V$  das per Flächeneinheit durch einen zur makroskopischen Strömungsrichtung senkrechten Einheitsquerschnitt strömende Flüssigkeitsvolumen, wobei der betrachtete Einheitsquerschnitt selbst sehr viele Poren durchschneidet. Der hydrodynamische Druck  $P$ , dessen Gradient in Gl. (1) auftritt, ist der Mittelwert des mikroskopischen Druckfeldes im flüssigkeitsgefüllten Teil des betrachteten makroskopischen Einheitsquerschnittes. Ferner ist  $\eta$  die dynamische Zähigkeit der Flüssigkeit und  $k$  eine nur von der Struktur des porösen Mediums abhängige Konstante, die sog. Permeabilität.

Da die Flüssigkeit als inkompressibel angenommen wurde, genügt die Filtergeschwindigkeit überdies der Kontinuitätsgleichung

$$\frac{dV}{dx} = 0. \quad (2)$$

Durch eine geeignete Verallgemeinerung der Gl. (1) und (2) kann man auch zu einer befriedigenden Beschreibung des schwierigeren Falles der gleichzeitigen Strömung von zwei nicht mischbaren inkompressiblen und zähen Flüssigkeiten gelangen. Hierzu muß man erst zwei weitere makroskopische Größen einführen, nämlich die Porosität  $f$  und die Sättigung  $S$ . Erstere ist das Verhältnis von Poren- und Totalvolumen des porösen Körpers, letztere das Verhältnis des von der Flüssigkeit 1 bzw. 2, eingenommenen Teil-

volumens zum gesamten Porenvolumen eines makroskopischen Volumenelementes. Wir nehmen an, daß das Porenvolumen ganz mit Flüssigkeit gefüllt ist und können uns daher darauf beschränken die Sättigung  $S$  der Flüssigkeit 1 einzuführen. Sättigung  $S$  und Porosität  $f$  sind also dimensionslose Größen, deren Betrag  $\leq 1$  bleibt.

Es ist nun naheliegend, anzunehmen, daß für die Strömung einer jeden der beiden Flüssigkeiten Proportionalität zwischen Filtergeschwindigkeit und Druckgradienten bestehen bleibt, daß jedoch die Permeabilität bezüglich der Flüssigkeit 1 durch die Anwesenheit der Flüssigkeit 2 beeinflusst wird und umgekehrt. Diese Änderung der Permeabilität wurde durch Einführung der sog. „relativen“ Permeabilitäten  $K_1$ ,  $K_2$  durch R. D. WYCKOFF und H. G. BOTSET berücksichtigt [2]. Viele experimentelle Untersuchungen haben ergeben, daß für ein gegebenes System von Flüssigkeiten und porösem Material die relativen Permeabilitäten nur von der Sättigung  $S$  abhängen. Allerdings gilt dies nicht ohne gewisse Einschränkungen, worauf wir am Ende dieser Arbeit noch zurückkommen werden.

Eine weitere Besonderheit der Strömung zweier nicht mischbarer Flüssigkeiten ist das Auftreten einer kapillaren Druckdifferenz an den Grenzflächen beider Flüssigkeiten. Im allgemeinen enthält ein makroskopisches Volumenelement des porösen Mediums sehr viele „mikroskopische“ Grenzflächen, so daß man einen mittleren Kapillardruck

$$P_c = P_2 - P_1 \quad (3)$$

definieren kann. Dieser hat einen positiven Wert, wenn  $P_1$  den mittleren Druck in der benetzenden Flüssigkeit bedeutet. Wie eingehende experimentelle Untersuchungen gezeigt haben, ist  $P_c$  für ein gegebenes Flüssigkeit-Festkörpersystem eine eindeutige Funktion der Sättigung  $S$  der benetzenden Flüssigkeit, mit  $dP_c/dS \leq 0$ , wenn man von Hystereseerscheinungen absieht. Dies ist auch begreiflich, denn der Porenraum besteht aus Poren verschiedener Weite und bei kleiner Sättigung befindet sich die benetzende Flüssigkeit in den engsten Poren. Erst mit zunehmender Sättigung wird die benetzende Flüssigkeit auch die weiteren Poren füllen. Da die Druckdifferenz an einer „mikroskopischen“ Grenzfläche von der Weite der Pore abhängt, wird sich auch der Mittelwert  $P_c$  mit  $S$  ändern [3]. Diese Abhängigkeit von  $S$  kann experimentell ermittelt werden und wir fassen daher  $P_c$  als eine bekannte Funktion von  $S$  auf.

Haben beide Flüssigkeiten verschiedenes spezifisches Gewicht, so wird auch die Schwerkraft einen Einfluß auf die Strömung haben. Bei vertikaler Strömung kann man dies ohne weiteres berücksichtigen, indem man zum hydrodynamischen Druck  $P$  das Schwerpotential hinzufügt. Bei nicht vertikaler Strömung zweier Flüssigkeiten hat die Schwerkraft

zur Folge, daß die Makroströmung mehrdimensional wird und hierdurch die mathematische Behandlung sehr erschwert wird. Im folgenden beschränken wir uns jedoch auf die eindimensionale Makroströmung zweier zäher Flüssigkeiten parallel zur positiven  $x$ -Achse, vernachlässigen also eine etwaige, zur  $x$ -Achse senkrechte Schwerkraftkomponente.

Durch Einführung der relativen Permeabilitäten  $K_1, K_2$  und des mittleren Kapillardruckes  $P_c$  gelangten M. MUSKAT und M. W. MERES [4] zu der naheliegenden Verallgemeinerung der d'Arcyschen Gleichung für die eindimensionale Strömung zweier zäher Flüssigkeiten:

$$\left. \begin{aligned} V_1 &= - \frac{k \cdot K_1(S)}{\eta_1} \cdot \frac{\partial P_1}{\partial x} \\ V_2 &= - \frac{k \cdot K_2(S)}{\eta_2} \cdot \frac{\partial P_2}{\partial x} \end{aligned} \right\} \quad (4)$$

wobei  $P_2 - P_1 = P_c(S)$  und  $0 \leq K_1, K_2 \leq 1$  für  $0 \leq S \leq 1$ .

Da eine befriedigende Theorie der relativen Permeabilitäten noch nicht besteht, hat man die Gln. (4) als Bestimmungsgleichungen für  $K_1, K_2$  aufzufassen und die relativen Permeabilitäten durch Volumen-Druck- und Sättigungsmessungen experimentell zu bestimmen. Wir betrachten also im folgenden  $K_1, K_2$  und  $P_c$  als gegebene Funktionen von  $S$ .

An die Stelle der Kontinuitätsgleichung (2) treten im Falle zweier gleichzeitig strömender Flüssigkeiten die beiden Gleichungen

$$\left. \begin{aligned} \frac{\partial V_1}{\partial x} &= -f \cdot \frac{\partial S}{\partial t} \\ \frac{\partial V_2}{\partial x} &= f \cdot \frac{\partial S}{\partial t} \end{aligned} \right\} \quad (5)$$

## 2. Die Sättigungsgleichung

Aus den Gln. (3), (4), (5) kann man nun eine Differentialgleichung für die Sättigung  $S(x, t)$  gewinnen. Aus (3) und (4) folgt

$$V_1 + V_2 = V_1 \cdot \left(1 + \frac{K_2}{K_1} \cdot \frac{\eta_1}{\eta_2}\right) - k \cdot \frac{K_2}{\eta_2} \cdot \frac{dP_c}{dS} \cdot \frac{\partial S}{\partial x} \quad (6)$$

oder

$$\frac{V_1}{V_{\text{tot}}} = F(S) \cdot \left(1 + \frac{k}{V_{\text{tot}}} \cdot \frac{K_2}{\eta_2} \cdot \frac{dP_c}{dS} \cdot \frac{\partial S}{\partial x}\right) \quad (7)$$

mit

$$F(S) = \left(1 + \frac{K_2}{K_1} \cdot \frac{\eta_1}{\eta_2}\right)^{-1} \quad \text{und} \quad V_{\text{tot}} = V_1 + V_2. \quad (8)$$

Da  $V_{\text{tot}}$  nicht von  $x$  abhängt, erhält man durch Einsetzen von (7) in (5) die Sättigungsgleichung

$$\left. \begin{aligned} \frac{\partial S}{\partial t} + \frac{V_{\text{tot}}}{f} \cdot \frac{dF}{dS} \cdot \frac{\partial S}{\partial x} + \\ + \frac{k}{f \cdot \eta_2} \cdot \frac{\partial}{\partial x} \left( K_2 \cdot F \cdot \frac{dP_c}{dS} \cdot \frac{\partial S}{\partial x} \right) &= 0. \end{aligned} \right\} \quad (9)$$

Schließlich können wir Gl. (9) noch in dimensionsloser Form schreiben; wenn wir die dimensionslosen Koordinaten

$$X = \frac{x}{L}, \quad T = \frac{1}{L \cdot f} \int_0^t (V_1 + V_2) dt \quad (10)$$

introduzieren. Hierin bedeutet  $L$  die Länge des porösen Reservoirs,  $L \cdot f$  also das auf Einheitsquerschnitt bezogene Porenvolumen, und  $T$  das während der Zeit  $t$  injizierte oder produzierte Totalvolumen, gemessen in Porenvolumina.

Man erhält dann die dimensionslose Gleichung

$$\left. \begin{aligned} \frac{\partial S}{\partial T} + \frac{dF}{dS} \cdot \frac{\partial S}{\partial X} + \\ + \frac{k}{L V_{\text{tot}} \cdot \eta_2} \cdot \frac{\partial}{\partial X} \left( K_2 \cdot F \cdot \frac{dP_c}{dS} \cdot \frac{\partial S}{\partial X} \right) &= 0. \end{aligned} \right\} \quad (11)$$

Der dritte Term in dieser nichtlinearen, parabolischen Differentialgleichung stellt den „Diffusionseffekt“ des Kapillardruckgradienten dar. In vielen Fällen ist dieser Term gegenüber dem zweiten Term vernachlässigbar. Wie man sich leicht überzeugen kann, bedeutet dies, daß in den Gln. (4) die beiden Druckgradienten einander gleichgesetzt werden. Der Einfluß des Kapillardruckgradienten auf die Sättigungsverteilung soll in einer folgenden Arbeit besprochen werden, während wir uns hier auf die Behandlung der vereinfachten Gleichung

$$\frac{\partial S}{\partial T} + \frac{dF}{dS} \cdot \frac{\partial S}{\partial X} = 0 \quad (12)$$

beschränken wollen.

Gl. (12) beschreibt auch die Sättigungsverteilung bei der radial-symmetrischen Strömung, wenn man für  $X$  und  $T$  substituiert:

$$\left. \begin{aligned} X &= \left(\frac{r}{R}\right)^2 \pi \\ T &= \frac{1}{f \cdot R^2 \pi} \int_0^t Q(\tau) d\tau \\ Q &= (V_1 + V_2) \cdot 2\pi R, \end{aligned} \right\} \quad (13)$$

wobei  $r$  den Abstand von der Injektionsstelle und  $R$  einen charakteristischen Radius bedeutet. Man kann sich hiervon leicht überzeugen, wenn man von den Bewegungs- und Kontinuitätsgleichungen für die Radialströmung ausgeht und die Druckgradienten in beiden Flüssigkeiten einander gleichsetzt.

Die Sättigungsgleichung (12) ist eine quasilineare Gleichung erster Ordnung, da der Koeffizient  $dF/dS$  eine Funktion der gesuchten Veränderlichen  $S$  ist. Eine graphische Methode zur Lösung der Gl. (12) für den Fall, daß längs der positiven  $X$ - und  $T$ -Achse eine stetige Sättigungsverteilung vorgegeben ist, wurde durch BUCKLEY und LEVERETT [5] angegeben. In allgemeinen hat man hierbei, um das Auftreten von mehrdeutigen und daher physikalisch sinnlosen Lösungen zu vermeiden, in die stetige Lösung Diskontinuitäten („Sättigungssprünge“) einzufügen. Zu einer mathematisch befriedigenden und durchsichtiger Behandlung der Gl. (12) gelangt man jedoch mit Hilfe der Charakteristikentheorie, die in der Gasdynamik seit langem auf ähnliche quasilineare Probleme angewandt wird. Wir wollen also im folgenden von dieser wohlbekannten Methode Gebrauch machen<sup>1</sup>.

Die zu Gl. (12) gehörenden charakteristischen Gleichungen sind

$$\left. \begin{aligned} dX/dT &= dF/dS \\ dS/dT &= 0 \end{aligned} \right\} \quad (14)$$

<sup>1</sup> In zwei kürzlich erschienenen Arbeiten von W. T. CARWELL [6] und J. W. SHELDON, B. ZONDEK, W. T. CARWELL wird ebenfalls Gl. (12) mittels der Charakteristikentheorie behandelt und das Auftreten unstetiger Lösungen diskutiert. Unseres Erachtens unterscheidet sich jedoch die vorliegende Arbeit in Inhalt und Darstellung hinreichend von den genannten Arbeiten, um einen weiteren Beitrag zum Verständnis der Zweiphasenströmung liefern zu können.



ese Gleichungen bestimmen nach Vorgabe der Sättigung längs der positiven  $X$ - und  $T$ -Achse eine Schar von Geraden in der  $X, T$ -Ebene („Grundcharakteristiken“), auf denen die Sättigung  $S$  konstant bleibt.

Ist  $S_i$  die Sättigung an der Injektionsstelle  $X=0$  zur Zeit  $T=T_i$  und  $S_0$  die Sättigung in  $X=X_0$  zur Zeit  $T=0$ , so erhält man aus (14) die Schar der von der positiven  $X$ -Achse ausgehenden Geraden mit konstanter Sättigung („Sättigungslinien“)

$$X(T) - X_0 = \frac{dF(S_0)}{dS} \cdot T, \quad (15)$$

und die von der positiven  $T$ -Achse ausgehende Schar

$$X(T) = \frac{dF(S_i)}{dS} \cdot (T - T_i). \quad (16)$$

Wie man sieht, pflanzt sich ein konstanter Sättigungswert mit der dimensionslosen Geschwindigkeit

$$C(S) = dF/dS \quad (17)$$

in  $X$ -Richtung fort.

Bilden die Sättigungslinien: (15), (16) eine der Viertelebene  $X \geq 0, T \geq 0$  einfach überdeckende Schar, so ist hierdurch die Sättigung  $S$  in diesem Gebiet eindeutig bestimmt. Der Fall, daß durch jeden Punkt der betrachteten Viertelebene genau eine Sättigungslinie läuft, tritt bei Vorgabe von stetig differenzierbaren Sättigungsverteilungen längs der positiven  $X$ - und  $T$ -Achse, die in  $X=0, T=0$  einen gemeinsamen Wert haben, genau dann ein, wenn

$$\left. \begin{aligned} \frac{\partial C}{\partial T} \Big|_{T=0} = \frac{d^2 F}{dS^2} \cdot \frac{\partial S}{\partial X} \Big|_{T=0} &\geq 0 \quad \text{für alle } X \geq 0 \\ \frac{\partial C}{\partial T} \Big|_{X=0} = \frac{d^2 F}{dS^2} \cdot \frac{\partial S}{\partial T} \Big|_{X=0} &\leq 0 \quad \text{für alle } T \geq 0 \end{aligned} \right\} \quad (18)$$

lt. Da  $C(S)$  die Neigung der Sättigungslinie mit der Sättigung  $S$  gegenüber der  $T$ -Achse darstellt, bedeuten diese Ungleichungen Divergieren bzw. Parallelität der Sättigungslinien in der positiven  $X$ - und  $T$ -Achse ausgehenden Sättigungslinien. Sind die Bedingungen (18) jedoch nicht erfüllt, so werden sich Sättigungslinien in einem bestimmten Gebiet der betrachteten Viertelebene schneiden. Die stetige Lösung der Gl. (12) wird dann in diesem Gebiet eine mehrdeutige Funktion von  $X$  und  $T$ , und daher physikalisch sinnlos (vgl. Abb. 1).

Wie die Formeln (18) zeigen, entscheiden über die Eindeutigkeit der stetigen Lösung nicht nur die Anfangs- und Randbedingungen, sondern auch die Form der experimentell bestimmten  $F(S)$ -Kurve. Abb. 2 zeigt eine typische  $F(S)$ -Kurve, die wie alle experimentell bestimmten  $F(S)$ -Kurven einen Wendepunkt besitzt. Bezeichnen wir die Sättigung des Wendepunktes mit  $S_w$ , so gilt

$$\left. \begin{aligned} d^2 F/dS^2 &\geq 0 \quad \text{für } S < S_w \\ d^2 F/dS^2 &\leq 0 \quad \text{für } S > S_w \end{aligned} \right\} \quad (19)$$

Aus (18) und (19) ersieht man, daß in den meisten Fällen einander schneidende Sättigungslinien auftreten werden. Dies ist jedoch gleichbedeutend mit dem Entstehen von Unstetigkeiten in der Sättigungsverteilung („Sättigungssprünge“), wie im folgenden Abschnitt näher ausgeführt werden soll.

### 3. Das Auftreten von Sättigungssprüngen

#### A. Nichtstationäre Sprünge

Wir nehmen zunächst an, daß die auf der positiven  $X$ - und  $T$ -Achse vorgegebenen Funktionen  $S(X, 0)$ ,

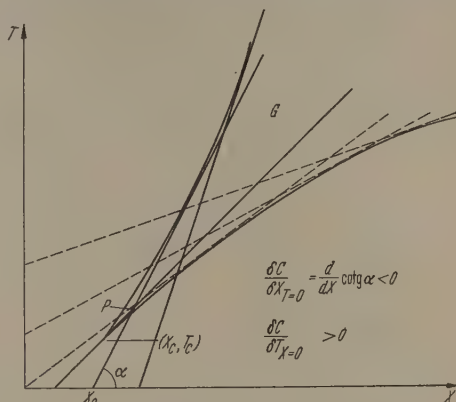


Abb. 1. Mehrdeutigkeit der Sättigungsverteilung

$S(0, T)$  stetig sind und für  $X=T=0$  einen gemeinsamen Wert annehmen. Wenn dann die Bedingungen (18) nicht erfüllt sind, werden sich Sättigungslinien innerhalb eines Teilgebietes  $G$  der Viertelebene  $X \geq 0, T \geq 0$  schneiden. Die Begrenzung von  $G$  wird hierbei durch zwei oder mehrere Enveloppen von Sättigungslinien gebildet (Abb. 1). Außerhalb  $G$ , wo durch jeden Punkt genau eine Sättigungslinie läuft, ist  $S$  eine stetige und eindeutige Funktion. Innerhalb  $G$  nimmt  $S$  in jedem Punkt 3 Werte an, da durch jeden Punkt drei Sättigungslinien laufen. Diese Mehr-

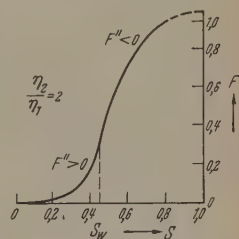


Abb. 2. Typische  $F(S)$ -Kurve nach S. E. BUCKLEY und M. C. LEVERETT

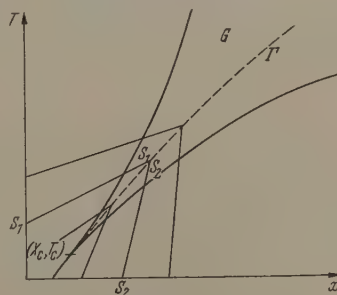


Abb. 3. Sättigungsverteilung mit Sprung

deutigkeit tritt zum erstenmal auf in  $X_c$  zur Zeit  $T_c$ , den Koordinaten der Spitze des Gebietes  $G$  (Abb. 1). Im Prinzip kann man mit Hilfe der Gln. (15), (16) die  $G$  begrenzenden Enveloppen und den Punkt  $(X_c, T_c)$  berechnen. Dies ist für uns jedoch von wenig Interesse, da das Experiment die für diese Berechnung nötige zweite und dritte Ableitung der Funktion  $F(S)$  nicht mit genügender Genauigkeit liefern kann. Wohl aber ist die erste Ableitung von  $F(S)$  mit hinreichender

Genauigkeit bekannt, um mittels der Sättigungslinien (15), (16) die Begrenzung des Gebietes  $G$  konstruieren zu können.

Die in  $G$  dreiwertige, stetige Lösung unseres Randwertproblems ist aber keinesfalls die einzige Lösung. Dies erkennt man sofort, wenn man eine willkürliche, ganz in  $G$  verlaufende und in  $(X_c, T_c)$  beginnende Kurve  $\Gamma$  betrachtet und alle durch  $G$  laufenden Sättigungslinien auf dieser Kurve enden läßt (Abb. 3). Die Sättigungslinien definieren dann eine Lösung  $S(X, T)$ , welche in der ganzen Viertelebene  $X \geq 0, T \geq 0$  eine stetige und eindeutige Funktion ist, auf  $\Gamma$  jedoch einen Sprung erleidet. Wir bezeichnen diesen Sättigungssprung in der üblichen Weise mit

$$[S] = S_1 - S_2, \quad (20)$$

wobei  $S_1$  und  $S_2$  die Sättigungswerte auf der linken bzw. rechten Seite von  $\Gamma$  bedeuten.

Abb. 4. Geometrische Repräsentation der Sättigungs-, Sprung- und Flüssigkeitgeschwindigkeiten

Eine unstetige Lösung unseres Randwertproblems kann jedoch mit Hilfe der Differentialgleichung (12) nicht eindeutig bestimmt werden. Dies kann nur eine äquivalente Integralrelation leisten, d. h. eine Integralrelation, der die stetigen Lösungen von (12) genügen, die aber insofern eine Verallgemeinerung der Differentialgleichung darstellt, als sie noch für Funktionen ihren Sinn behält, die mit sprunghaften Unstetigkeiten behaftet sind.

In unserem Falle findet man diese Integralrelation sofort, wenn man etwa die erste der Kontinuitätsgleichungen (5) für ein festes, die Sprungstelle einschließendes  $X$ -Intervall in Integralform schreibt. Sie liefert für einen in  $X$ -Richtung sich bewegenden Sättigungssprung  $[S]$  die triviale Aussage, daß die per Zeiteinheit in den Sprung ein- und austretenden Mengen der Flüssigkeit 1 gleich sind. Es gilt also für den Sättigungssprung  $[S]$ , der sich mit der dimensionslosen Geschwindigkeit  $U(T)$  in  $X$ -Richtung bewegt:

$$S_1(W_1 - U) = S_2(W_2 - U), \quad (21)$$

wobei  $W$  die dimensionslose Geschwindigkeit der Flüssigkeit 1 ist, welche bei Passieren des Sprunges ihren Wert unstetig von  $W_1$  in  $W_2$  ändern muß.

Aus Gl. (7) folgt nach Weglassen des Kapillardrucktermes für die per Zeiteinheit einen festen Einheitsquerschnitt passierende Menge der Flüssigkeit 1:

$$V_1 = F(S) \cdot V_{\text{tot}}, \quad (22)$$

also für die makroskopische Geschwindigkeit der Flüssigkeit 1:

$$v_1 = \frac{F(S) \cdot V_{\text{tot}}}{f \cdot S}. \quad (23)$$

Durch Einführen der dimensionslosen Koordinaten (10) in Gl. (23) erhält man schließlich für die dimensionslose Geschwindigkeit  $W$  der Flüssigkeit 1:

$$W = F(S)/S. \quad (24)$$

Mit Hilfe dieses Ausdruckes kann Gl. (21) in der Form

$$U(T) = \frac{dX_s}{dT} = \frac{F(S_1) - F(S_2)}{S_1 - S_2} \quad (25)$$

geschrieben werden, worin  $X_s$  die Ortskoordinate des Sättigungssprunges ist. Diese Gleichung stellt die dimensionslose Geschwindigkeit eines Sättigungssprunges  $[S] = S_1 - S_2$  dar.

Die Sprunggeschwindigkeit, sowie die durch Gln. (17) und (24) definierten Sättigungs- und Flüssigkeitgeschwindigkeiten können unmittelbar von der  $F(S)$ -Kurve abgelesen werden (Abb. 4). Weiter folgt aus (17) und (24) wegen  $F(0) = 0$ :

$$W(S) = \frac{1}{S} \cdot \int_0^S C(S) dS \quad (26)$$

und aus (17) und (25)

$$U(S_1, S_2) = \frac{1}{S_1 - S_2} \int_{S_2}^{S_1} C(S) dS. \quad (27)$$

Die Flüssigkeits- und Sprunggeschwindigkeiten sind also Mittelwerte der Sättigungsgeschwindigkeiten.

Eine interessante Beziehung erhält man aus (26), wenn man Gl. (26) mit  $S$  multipliziert und dann nach  $S$  differenziert:

$$C(S) = \frac{d(W \cdot S)}{dS} = W + S \cdot \frac{dW}{dS}. \quad (28)$$

Diese Gleichung ist der aus der Wellenlehre bekannte Beziehung zwischen Phasen- und Gruppengeschwindigkeit vollkommen analog. Der Sättigungsgeschwindigkeit entspricht die Gruppengeschwindigkeit, die Flüssigkeitgeschwindigkeit die Phasengeschwindigkeit und der Sättigung die Wellenzahl. Diese Analogie illustriert den Unterschied zwischen den Geschwindigkeiten  $C$  und  $W$ .  $C$  ist die Geschwindigkeit womit ein „Sättigungssignal“ in der Flüssigkeitsströmung fortpflanzt.

Wir wenden uns nun wieder der Beziehung (25) mit deren Hilfe die unstetige Lösung unseres Randwertproblems in eindeutiger Weise bestimmt werden kann. In jedem inneren Punkt  $P$  des Gebietes  $G$  sei durch die Sättigungslinien drei Sättigungswerte definiert (Abb. 1). Betrachten wir zunächst nur die größten und den kleinsten dieser Werte,  $S_{\text{max}}$  und  $S_{\text{min}}$ , so schreibt Gl. (25) in  $P$  die Richtung

$$dX_s/dT = [F(S_{\text{max}}) - F(S_{\text{min}})] / (S_{\text{max}} - S_{\text{min}}) \quad (29)$$

vor. Falls die Sprungbahn  $\Gamma$  durch  $P$  läuft, muß dort diese Richtung haben. Dieselbe Betrachtung gilt für jeden inneren Punkt von  $G$ , d. h. Gl. (29) definiert ein Richtungsfeld in  $G$  (Abb. 5). Ferner wissen wir, daß der Sprung in der Spitze  $(X_c, T_c)$  entstehen muß, die Sprungbahn also in diesem Punkte beginnt. Anfangsrichtung ist auch bekannt, da unter der Voraussetzung stetiger Randfunktionen nur eine Sättigungslinie durch  $(X_c, T_c)$  läuft, deren Richtung gleich die Anfangsrichtung der Sprungbahn ist.

Durch das Richtungsfeld (29) und das Richtungselement in  $(X_c, T_c)$  ist die Sprungbahn  $\Gamma$  als Lösung der gewöhnlichen Differentialgleichung (25) eindeutig bestimmt (Abb. 5). Zu ihrer Konstruktion stehen verschiedene Methoden zur Verfügung. Im allgemeinen genügt es jedoch, die Kurve nach Augenmaß in das Richtungsfeld einzufügen, da die bei der experimentellen Bestimmung von  $F(S)$  und  $dF/dS$  auftretenden



Beifehler eine hohe Genauigkeit bei der Bestimmung von  $\Gamma$  überflüssig machen. Läßt man schließlich noch die durch  $G$  laufenden Sättigungslinien auf  $\Gamma$  enden, erhält man die graphische Darstellung der mit einer Unstetigkeit behafteten, aber ansonsten in  $X$  und  $T$  eindeutigen Sättigungsverteilung (vgl. Abb. 3).

Wir haben bisher nur den größten und kleinsten Sättigungswert in jedem Punkt des Gebietes  $G$  berücksichtigt, nicht aber den dritten durch die Sättigungslinien definierten Wert  $S^+$ . Es fragt sich daher, ob die gefundene Sättigungsverteilung die einzige physikalisch sinnvolle Lösung darstellt, oder ob auch andere Lösungen mit den Sprüngen  $[S] = S_{\max} - S^+$ ,  $[S] = S^+ - S_{\min}$  gefunden werden können. Die Paare von Sättigungslinien mit  $S_{\max}$ ,  $S^+$  und  $S_{\min}$ ,  $S^+$  definieren in jedem Punkt  $P$  von  $G$  mit Ausnahme der Spitze  $(X_c, T_c)$  gemäß Gl. (25) und Abb. 4 zwei, im allgemeinen verschiedene Richtungen. Diesem doppelten Richtungsfeld entsprechen zwei durch den Punkt  $(X_c, T_c)$  laufende Sprungbahnen. Man kann sich nun aber leicht davon überzeugen, daß es unmöglich ist, die Sättigungslinien auf den zugehörigen Sprungbahnen enden zu lassen, ohne daß sie sich auch außerhalb der Sprungbahnen schneiden. Die durch Einfügen des Sprunges  $[S] = S_{\max} - S_{\min}$  in das Richtungsfeld der gefundenen Lösung ist also die einzige physikalisch sinnvolle.

Der in  $(X_c, T_c)$  entstandene Sättigungssprung läßt sich am besten als die paarweise auf  $\Gamma$  zumutendsten Sättigungslinien eine zunehmende Differenz zwischen links- und rechtsseitigem Sättigungswert auf  $\Gamma$  hervorrufen. Wird nun  $S_2$ , der kleinere dieser beiden Sättigungswerte, konstant, so kann  $S_1$  längs  $\Gamma$  höchstens bis zu einem bestimmten Wert  $S_{1\max}$  zunehmen, welcher durch die Gleichung

$$\left(\frac{dF}{dS}\right)_{S=S_{1\max}} = \frac{F(S_{1\max}) - F(S_2)}{S_{1\max} - S_2} \quad (30)$$

bestimmt ist. Diese Gleichung besagt nämlich, daß die zu  $S_{1\max}$  gehörende Sättigungslinie Tangente an die Sprungbahn ist. Für  $S_1 > S_{1\max}$  kann die zugehörige Sättigungslinie die Kurve  $\Gamma$  nicht mehr erreichen. Natürlich kann der Wert  $S_{1\max}$  nur dann erreicht werden, wenn dieser Wert in den Randbedingungen überhaupt auftritt. Nach Gl. (30) kann der zu einem konstanten  $S_2$  gehörende  $S_{1\max}$ -Wert mittels einer einfachen Tangentenkonstruktion von der  $F$ -Kurve abgelesen werden [8] (Abb. 4).

Der Wert von  $S_{1\max}$  hängt stark vom Viskositätsverhältnis  $\eta_1/\eta_2$  ab, da die Funktion  $F$  selbst von diesem Verhältnis abhängt. Die  $F$ -Kurve ist in ihrem Beginn um so steiler, je kleiner  $\eta_1/\eta_2$  ist. Dementsprechend liefert dann auch die Tangentenkonstruktion mit der werdendem Verhältnis  $\eta_1/\eta_2$  kleinere Werte für  $S_{1\max}$ .

Wir wollen nun noch zeigen, daß die Behandlung der Sättigungsgleichung (12) mittels der Charakteristikentheorie auch die Begründung liefert für eine andere, von S. E. BUCKLEY und M. C. LEVERETT [5] angegebene Methode zur Konstruktion der Sättigungsverteilung.

Hierzu gehen wir wieder aus von stetigen Randbedingungen  $S(X, 0)$  und  $S(0, T)$ . Da durch diese Randbedingungen die Lösung in  $0 \leq X \leq 1$ ,  $T \geq 0$  bereits bestimmt ist, kann man sich die Anfangs-

verteilung  $S(X, 0)$  über den Punkt  $X = 1$  hinaus derart fortgesetzt denken, daß für alle  $X \geq 1$   $S(X, 0) = S(1, 0)$  wird. Stellt man nun die zum Zeitpunkt  $T$  herrschende Sättigungsverteilung in der  $S, X$ -Ebene dar, so schließt diese, wie in Abb. 6 gezeigt ist, mit der  $S$ -Achse und der Anfangsverteilung ein Gebiet mit dem Inhalt

$$I = \int_0^a [S(X, T) - S(X, 0)] dX \quad (31)$$

ein. Unter  $a$  sei hierbei ein willkürlicher aber fester Punkt auf der  $X$ -Achse verstanden, der im Gebiet

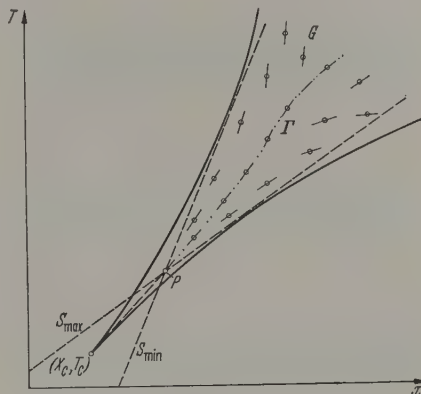


Abb. 5. Konstruktion der Sprungbahn

ungestörter Sättigung  $S(1, 0)$  liegt. Da die im allgemeinen unstetige Sättigungsverteilung  $S(X, T)$  durch Anwendung der Kontinuitätsgleichung in

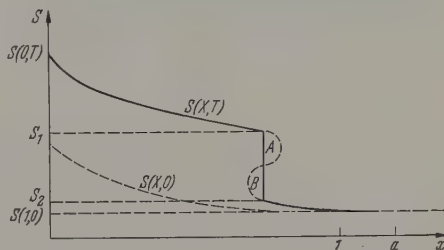


Abb. 6. Konstruktion der momentanen Sättigungsverteilung

Integralform erhalten wurde, gilt nach Gl. (24):

$$\left. \begin{aligned} \frac{\partial}{\partial \tau} \int_0^a S(X, \tau) dX \\ = W(0, \tau) \cdot S(0, \tau) - W(a, \tau) \cdot S(a, \tau) \\ = F(S(0, \tau)) - F(S(1, 0)) \end{aligned} \right\} \quad (32)$$

Durch Integration dieser Beziehung über das Zeitintervall  $0 \leq \tau \leq T$  erhält man unter Benützung von Gl. (31)

$$I = \int_0^T [F(S(0, \tau)) - F(S(1, 0))] d\tau. \quad (33)$$

Wir betrachten nun die stetige, mehrdeutige Lösung der Gl. (12), die durch die unverkürzten Sättigungslinien in der  $X, T$ -Ebene definiert ist (Abb. 1). Die zu einem beliebigen Zeitpunkt  $T$  herrschende mehrdeutige Sättigungsverteilung kann man dann unmittelbar von dem Diagramm der Sättigungslinien ablesen. Man

kann die momentane, mehrdeutige Verteilung aber auch in der  $S, X$ -Ebene konstruieren, wenn man jeden in den Randbedingungen auftretenden Sättigungswert gemäß den Gln. (15), (16) längs der positiven  $X$ -Achse verschiebt. Das Resultat ist als punktierte Kurve  $AB$  in Abb. 6 angedeutet. Dem Mehrdeutigkeitsgebiet  $G$  in der  $X, T$ -Ebene (Abb. 1) entspricht nun in der  $S, X$ -Ebene ein gewisses Mehrdeutigkeitsintervall der  $X$ -Achse. Außerhalb dieses Intervalles fallen stetige und unstetige Sättigungsverteilung zusammen. Es kann nun leicht gezeigt werden, daß die physikalisch sinnlose, stetige Sättigungsverteilung in der  $S, X$ -Ebene

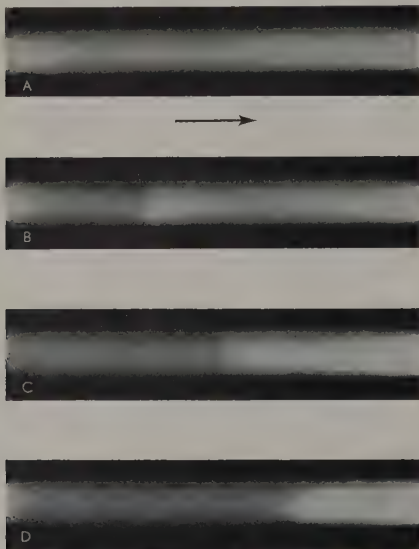


Abb. 7 A—D. Spontanes Auftreten eines Sättigungssprunges bei gleichzeitiger Injektion zweier verschieden visköser Flüssigkeiten. ( $\eta_1/\eta_2 = 1000$ , Anfangssättigung  $S(0, X) = 0,55$ ,  $K = 20$  Darcy,  $f = 0,34$ )

mit der Anfangsverteilung denselben Inhalt einschließt wie die unstetige Sättigungsverteilung.

Zum Beweis nehmen wir zunächst an, daß die stetige Anfangsverteilung  $S(X, 0)$  mit wachsendem  $X$  monoton abnimmt und die stetige Funktion  $S(0, T)$  mit wachsendem  $T$  monoton zunimmt. In  $X=0$ ,  $T=0$  mögen beide Funktionen einen gemeinsamen Wert annehmen. Innerhalb des Mehrdeutigkeitsintervalles kann die mehrdeutige Sättigungsverteilung  $S(X, T)$  durch die Umkehrung  $X(S, T)$  beschrieben werden, die eine eindeutige Funktion der neuen unabhängigen Veränderlichen  $S$  ist. Für den von der stetigen Sättigungsverteilung und der Anfangsverteilung zum Zeitpunkt  $T$  in der  $S, X$ -Ebene eingeschlossenen Inhalt erhält man also:

$$I' = \int_{S(a, T)=S(1,0)}^{S(0,T)} [X(S, T) - X(S, 0)] dS \quad (34)$$

oder mit Benützung der Gln. (15), (16):

$$I' = \int_{S(1,0)}^{S(0,T)} F'(S) \left( \int_{\tau(S)}^T d\tau \right) dS \quad (F' = dF/dS), \quad (35)$$

wobei  $\tau(S)$  den Zeitpunkt des Auftretens der Sättigung  $S$  in  $X=0$  bedeutet. Für die in der Anfangsverteilung enthaltenen Sättigungswerte hat man  $\tau(S) = 0$  zu setzen.

Wegen der vorausgesetzten Monotonie der Randbedingungen kann man die Integrationsfolge vertauschen und erhält schließlich:

$$\left. \begin{aligned} I' &= \int_0^T \left( \int_{S(1,0)}^{S(0,\tau)} F'(S) dS \right) d\tau \\ &= \int_0^T [F(S(0, \tau)) - F(S(1, 0))] d\tau. \end{aligned} \right\} \quad (36)$$

Die von den beiden momentanen Sättigungsverteilungen mit der Anfangsverteilung eingeschlossenen Inhalte  $I$  und  $I'$  sind also gleich groß. Man kann sich leicht davon überzeugen, daß dieses Resultat auch gilt, wenn nur stückweise Monotonie der Randbedingung verlangt wird.

Wegen  $I = I'$  und des Zusammenfallens von unstetiger und stetiger Sättigungsverteilung außerhalb des Mehrdeutigkeitsintervalles kann man also die wirkliche, d.h. unstetige Sättigungsverteilung, für jeden beliebigen Zeitpunkt  $T$  erhalten, wenn man die momentane, mehrdeutige Sättigungsverteilung einen vertikalen Sprung einfügt, der mit der mehrdeutigen Verteilung zwei Segmente  $A, B$  gleichen Inhaltes bildet (vgl. Abb. 6).

Das Auftreten von Sättigungssprüngen kann man in transparenten Modellen sichtbar machen. Man wendet hierzu eine homogene Packung von Glaskörnchen und sättigt sie mit zwei verschiedenen Flüssigkeiten, wovon die eine denselben Brechungsindex wie das Glas besitzt. Erfüllt diese Flüssigkeit die Porenraum vollständig, so wird die Packung transparent. Dagegen macht sich die Anwesenheit der zweiten Flüssigkeit, deren Brechungsindex von dem des Glases abweicht, durch eine Trübung der Packung bemerkbar. Die entstehende Kontrastwirkung liefert einen — zumindest qualitativen — Eindruck von der Verteilung der beiden Flüssigkeiten im Strömungsgebiet [9].

Abb. 7 zeigt Photographien verschiedener Stadien nach dieser Methode durch L. SCHENK in unserem Laboratorium ausgeführten Experimentes. Zu Beginn (Abb. 7A) ist die Packung zu 55% mit hochviskösem Öl (1000 cP) und zu 45% mit Wasser nahezu gleichmäßig gesättigt. Beide Flüssigkeiten können gemeinsam in einem derartigen Volumenverhältnis injiziert werden, daß die Beginnsättigung in der Packung nicht gestört wird. Das zur Aufrechterhaltung einer bestimmten Ölsättigung  $S$  erforderliche Injektionsverhältnis  $F(S) = V_{Öl}/(V_{Öl} + V_{Wasser})$  ist durch die Beziehung (8) gegeben. Wird nun dieses Injektionsverhältnis durch Vergrößerung des Ölanteiles an der per Zeiteinheit injizierten Flüssigkeitsmenge stetig erhöht, — in vorliegendem Experiment von 0 auf 50% —, so nimmt auch die Ölsättigung in der Umgebung des Injektionsendes zu. Da nun aber innerhalb eines gewissen Sättigungsintervalles höhere Ölsättigungen eine größere Geschwindigkeit besitzen als kleine, kommt es zu spontaner Bildung eines Sättigungssprunges, der in Abb. 7B deutlich zu sehen ist. Die gegenüber der Anfangszustand erhöhte Ölsättigung macht sich an einer Schwärzung des Bildes bemerkbar. Die weiteren Abbildungen zeigen die Bewegung des Sättigungssprunges und die damit verbundene Expansion des „Ölbanks“.



### B. Parameterdarstellung von Sättigungssprüngen

An Stelle der konstruktiven Bestimmung eines Sättigungssprunges  $[S] = S_1 - S_0$  kann man auch versuchen, einen analytischen Ausdruck für das Wachstum und die Bewegung des Sprunges zu finden. Wir schränken uns im folgenden auf den Fall, daß zur Zeit  $T = 0$  die Sättigung für  $X \geq 0$  den konstanten Wert  $S_0$  hat, wobei  $S_0$  im Inneren des  $S$ -Intervalles liegt, wofür  $d^2F/dS^2 \geq 0$  ist (Abb. 2). Weiter sei  $S(0, T)$  eine bekannte, monoton zunehmende Funktion und  $S(0, 0) = S_0^*$ . Der Zeitpunkt  $\tau$  des Erscheinens der Sättigung  $S$  in  $X = 0$  ist uns also bekannt:

$$\tau = \tau(S). \quad (37)$$

Die angenommenen Randbedingungen befriedigen nicht die Ungleichungen (18) und es muß daher ein Sättigungssprung entstehen.

Wir betrachten wieder eine momentane, unstetige Sättigungsverteilung, und zwar zu einem Zeitpunkt  $T_s$ , die untere Grenze  $S_2$  des Sprunges bereits den Wert  $S_0$  angenommen hat, die Sprungstelle  $X_s$  sich so bereits im Gebiet ungestörter Anfangssättigung  $S_0$  befindet (Abb. 8). In der Zeit  $T_s$  muß die Sättigung  $S_1$  im Weg  $X_s$  zurückgelegt haben. Nach Gl. (16) und (7) gilt daher

$$X_s = F'(S_1) [T_s - \tau(S_1)]. \quad (38)$$

Weiter schließt die Sättigungsverteilung zur Zeit  $T_s$  mit der Anfangsverteilung ein Gebiet der  $S, X$ -Ebene ein, dessen Inhalt nach Gl. (33) gegeben ist durch

$$I = \int_0^{T_s} F(S(0, \tau)) d\tau - F(S_0) \cdot T_s. \quad (39)$$

Wie man aus Abb. 8 unmittelbar ersieht, kann man diesen Inhalt auch schreiben:

$$I = X_s(S_1 - S_0) + \int_{S_1}^{S(0, T_s)} X(S, T_s) dS. \quad (40)$$

Der in diesem Ausdruck auftretende Integralterm läßt sich wieder auf dieselbe Weise umformen wie in den Gln. (34), (35), (36), so daß Gl. (40) übergeht in

$$I = X_s(S_1 - S_0) + \int_{\tau(S_1)}^{T_s} [F(S(0, \tau)) - F(S_1)] d\tau. \quad (41)$$

Einsetzen der Ausdrücke (39) und (41) ergibt

$$X_s(S_1 - S_0) = \int_0^{\tau(S_1)} F(S(0, \tau)) d\tau - F(S_0) T_s + \left. \begin{aligned} &+ F(S_1) (T_s - \tau(S_1)) \end{aligned} \right\} \quad (42)$$

und nach Eliminieren von  $T_s$  mittels Gl. (38) erhält man schließlich

$$X_s = \left[ \int_0^{\tau(S_1)} F(S(0, \tau)) d\tau - F(S_0) \cdot \tau(S_1) \right] \times \left. \begin{aligned} &\times [S_1 - S_0 - (F(S_1) - F(S_0))/F'(S_1)]^{-1}. \end{aligned} \right\} \quad (43)$$

Der Integralausdruck in obiger Gleichung bedeutet gemäß Gl. (24) die bis zum Erscheinen der Sättigung  $S_1$  in  $X = 0$  injizierte Menge der Flüssigkeit, deren Sättigungsverteilung wir betrachten. Da uns die Sättigung in  $X = 0$  als Funktion der Zeit bekannt ist

\* Der Fall  $d^2F/dS^2 \leq 0$ ,  $S(0, T)$  monoton abnehmend, läßt sich ganz analog behandeln.

und umgekehrt, ist dieser Integralausdruck eine bekannte Funktion von  $S_1$ . Die Gln. (38) und (43) stellen also zusammen die Bewegung des Sättigungssprunges  $X_s(S_1)$ ,  $T_s(S_1)$  dar, wobei die obere Sprunggrenze  $S_1$  als Parameter dient. Allerdings gilt, zufolge der gemachten Voraussetzungen, diese Parameterdarstellung nur für  $S_1 \geq \bar{S}_1$ , wobei  $\bar{S}_1$  die obere Sprunggrenze bedeutet zum Zeitpunkt, da die untere Grenze  $S_2$  erstmalig den Wert  $S_0$  der Anfangssättigung annimmt.

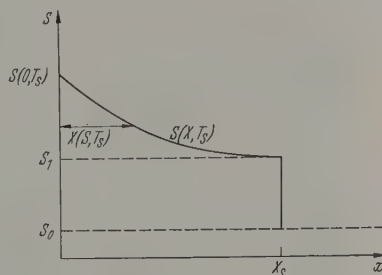


Abb. 8. Zur Parameterdarstellung eines Sättigungssprunges

Da dies der Fall ist wenn die Sprungbahn in der  $X, T$ -Ebene die durch den Punkt  $X = T = 0$  laufende Sättigungslinie schneidet (Abb. 9), oder auf ihr ent-

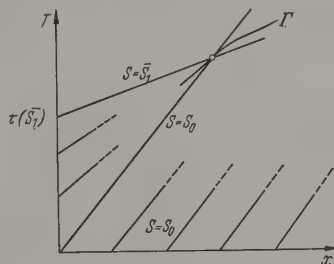


Abb. 9. Zur Parameterdarstellung eines Sättigungssprunges

springt, hat man gemäß Gl. (15) noch die einfache Beziehung

$$X_s = T_s \cdot F'(S_0) \quad (44)$$

zur Verfügung, um mittels der Gln. (38) und (42) den kleinst zulässigen Parameterwert  $S_1 = \bar{S}_1$  zu bestimmen.

Ist insbesondere die Anfangssättigung  $S_0$  gleich null oder immobil, d. h.  $F(S_0) = F'(S_0) = 0$ , so muß die untere Sprunggrenze den Wert  $S_0$ , gemäß Gl. (44) bereits in  $X_s = 0$  annehmen. Aus den Gln. (38) und (42) folgt dann weiter  $\tau(\bar{S}_1) = 0$ , weil der Integrand des in Gl. (42) auftretenden Integrals für alle  $S > S_0$  positiv ist. Der kleinst zulässige Parameterwert  $\bar{S}_1$  ist also der zur Zeit  $\tau = 0$  an der Injektionsstelle  $X = 0$  herrschende Sättigungswert  $S_0$ . Die Parameterdarstellung (38), (43) gilt also im Falle immobilen Anfangssättigung  $S_0$  für alle Parameterwerte  $S_1 \geq S_0$  und beschreibt daher die ganze Sprungbahn.

### C. Stationäre Sättigungssprünge

Während bisher stetige Randbedingungen vorgeschrieben waren, soll nun eine sprunghafte Unstetigkeit in den Randbedingungen zugelassen werden. Es möge etwa zur Zeit  $T = 0$  eine sprunghafte Erhöhung

der Sättigung in  $X=0$  auf den Wert  $S'$  stattfinden, während zu diesem Zeitpunkt in einer Umgebung  $X>0$  der Injektionsstelle  $X=0$  noch die konstante Sättigung  $S_0$  herrsche. Eine derartige Randbedingung gilt z. B., wenn man in ein mit zwei Flüssigkeiten gefülltes poröses Medium nur eine der beiden Flüssigkeiten einströmen läßt.

Die sprunghafte Erhöhung der Sättigung auf den Wert  $S'$  kann man sich als Grenzfall einer Folge stetiger Sättigungserhöhungen in  $X=0$  mit  $\partial S/\partial T>0$

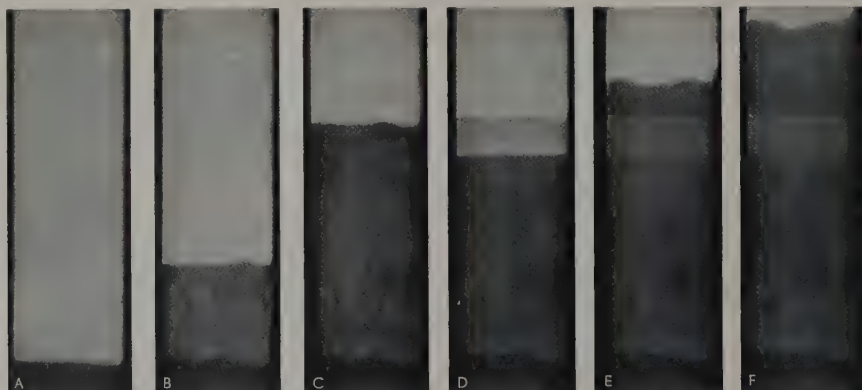


Abb. 10 A—F. Stationäre Sättigungssprünge in transparentem Modell. Modellabmessungen:  $60 \times 15,1 \times 3$  cm<sup>3</sup>, Porosität: 0,35, Permeabilität: 142 D. Kaliumrhodanidlösung:  $\eta = 2,4$  cP,  $\rho = 1,39$  g/cm<sup>3</sup>, Ölgemisch:  $\eta = 86$  cP,  $\rho = 0,88$  g/cm<sup>3</sup>, Grenzflächenspannung: 3 dyn/cm, Injektionsgeschwindigkeit:  $1,18 \cdot 10^{-3}$  cm/sec

vorstellen, wenn man die Zeit  $\tau(S')$ , die bis zum Auftreten der Sättigung  $S'$  in  $X=0$  verstreicht, gegen Null streben läßt. Weiter gelte zumindest für einen Teil des Sättigungsintervalles  $S_0 \leq S \leq S'$ :  $d^2 F/dS^2 > 0$  (vgl. Abb. 2). Da dann die zweite der Bedingungen (18) nicht erfüllt ist, muß jede der betrachteten, stetigen Sättigungserhöhungen zum Auftreten eines Sättigungssprunges  $[S] = S_1 - S_0$  führen, dessen obere Grenze  $S_1$  bis zu dem durch Gl. (30) gegebenen Maximalwert  $S_{1\max}$  anwächst, vorausgesetzt, daß dieser Sättigungswert in den Randbedingungen überhaupt vorkommt. Für einen solchen Sättigungssprung gilt Gl. (43) sobald die untere Sprunggrenze  $S_2$  den Wert  $S_0$  angenommen hat. Beim Grenzübergang  $\tau(S') \rightarrow 0$  zur unstetigen Sättigungserhöhung in  $X=0$  strebt die Stelle, wo  $S_2 = S_0$  wird, gegen  $X=0$ . Weiter verschwindet der Zähler der rechten Seite von Gl. (43) und es muß daher für den in das Strömungsgebiet  $X>0$  eintretenden Sprung gelten:

$$F'(S_1) = \frac{F(S_1) - F(S_0)}{S_1 - S_0} \quad (45)$$

Der Sättigungssprung tritt also nicht mit der Intensität  $[S] = S' - S_0$  des „Randsprunges“ in das Strömungsgebiet  $X>0$  ein, sondern mit der reduzierten oberen Grenze  $S_1$ , die mit dem durch Gl. (30) für stetige Randbedingungen definierten Höchstwert  $S_{1\max}$  identisch ist. Dieser reduzierte Sprung durchläuft das Gebiet konstanter Anfangssättigung  $S_0$  gemäß Gl. (45) mit der konstanten Geschwindigkeit  $F'(S_{1\max})$ . Geschwindigkeit und Intensität dieses Sprunges können mittels der bereits im Anschluß an Gl. (30) erwähnten Tangentenkonstruktion von der  $F$ -Kurve abgelesen werden (Abb. 4).

Wird die Sättigung in  $X=0$  sprunghaft auf  $S' < S_{1\max}$  erhöht und dann konstant gehalten, so kann die obere Grenze  $S_1$  des Sprunges den Wert  $S'$  nicht

überschreiten, also den durch Gl. (45) bestimmte Wert nicht annehmen<sup>1</sup>. Der am Rande vorgeschriebene Sättigungssprung durchläuft das Gebiet konstanter Anfangssättigung mit unveränderter Intensität.

Sättigungssprünge der eben betrachteten Art kann man in Packungen von Glaskörnchen mittels einer von Dr. H. NAUTA in unserem Laboratorium entwickelten Methode beobachten. Bei dieser Methode werden im Gegensatz zu der Technik, die bei dem Abb. 7 dargestellten Experiment verwendet wurde, die

Brechungsindizes beider Flüssigkeiten dem Brechungsindex der Glaskörner angeglichen. Die eine der verwendeten Flüssigkeiten ist ein Gemisch organischer Flüssigkeiten, das den gewünschten Brechungsindex besitzt. Als zweite Flüssigkeit dient eine wäßrige Lösung von Kaliumrhodanid, welche zur Erzielung von Farbkontrasten mit Kobaltchlorid blau gefärbt wird. Die Zufügung dieses Farbstoffes, der von den Pyrexglaskörnchen der Packung nicht adsorbiert wird, gestattet Sättigungsunterschiede in der durchströmten Packung als Farbunterschiede direkt zu beobachten.

Abb. 10A zeigt eine Packung von Pyrexglaskörnchen, welche im unteren, in der Photographie schwarz erscheinenden Teil, hundertprozentig mit Kaliumrhodanidlösung gesättigt ist, während das darüber liegende Gebiet vollständig mit einem Gemisch flüchtiger Kohlenwasserstoffe gesättigt ist. Man erhält eine solche Füllung des Porenraumes, wenn man erst an der trockenen Packung die Luft durch Butangas austreibt, danach das Gas aus dem unteren Teile der Packung durch Injektion von Kaliumrhodanidlösung verdrängt und schließlich von oben in die Packung ein Ölgemisch einströmen läßt, worin sich das Butangas vollständig löst. Bei neuerlicher Injektion von Kaliumrhodanidlösung entsteht aus dem anfänglichsten Sättigungssprung der Intensität  $[S]=1$  ein neuer Sprung mit der geringeren Intensität  $[S]=0,6$ , der mit konstanter Geschwindigkeit das Reservoir durchläuft (Abb. 10B, C).

#### 4. Gültigkeitsbereich der Theorie

Soll die Sättigungsverteilung durch Gl. (12) richtig beschrieben werden, so müssen erstens die Bedingung

<sup>1</sup> Dies steht keineswegs in Widerspruch zu Gl. (43), diese Gleichung für eine in  $X=0$  konstant gehaltene Sättigung  $S_1$  nicht mehr gilt.



füllt sein, denen schon die Strömung einer Flüssigkeit genügen muß, damit Proportionalität zwischen dem Druckgradienten und der Filtergeschwindigkeit besteht. Die Strömung muß also insbesondere „schleichend“ sein. Zweitens müssen für ein gegebenes System von Flüssigkeiten und Festkörper die relativen Permeabilitäten eindeutige Funktionen der Sättigung allein sein. Dies bedeutet gemäß Gl. (4), daß die vom porösen Festkörperskelett auf die Flüssigkeiten ausgeübten Reaktionskräfte

$$\frac{\eta_1 V_1}{K \cdot K_1(S)}, \quad \frac{\eta_2 V_2}{K \cdot K_2(S)}$$

eindeutige Funktionen der Sättigung  $S$  sein müssen.

Die Vermutung liegt nun aber nahe, daß diese Reaktionskräfte auch noch von der „mikroskopischen“ Verteilung der Flüssigkeiten im Porenraum abhängen. Man wird z. B. erwarten, daß für ein gegebenes Flüssigkeiten-Festkörper-System, die auf die Flüssigkeit 1 ausgeübte Reaktionskraft bei gleicher Sättigung einen anderen Betrag haben wird, je nachdem diese Flüssigkeit die engen oder weiten Poren bevorzugt, oder gar durch eine Schicht der Flüssigkeit 2 von der Festkörperwand getrennt ist.

Daß tatsächlich in ein und demselben System gänzlich verschiedene relative Permeabilitätsfunktionen bzw. verschiedene  $F$ -Kurven gelten können, zeigt das folgende, in Abb. 10D, E, F wiedergegebene Experiment. Nachdem die Sättigungsfrent der von unten in das poröse Reservoir injizierten Flüssigkeit 1 in Abb. 10C gezeigten Stand erreicht hat, schließt man die Zu- und Abflußöffnungen. Da die Flüssigkeit 1 schwerer ist als Flüssigkeit 2, entsteht unter dem Einfluß der Kapillar- und Schwerkraft ein streifenförmiges Gebiet mit sehr niedriger Sättigung (Abb. 10D). Bei Wiederaufnahme der Injektion von Flüssigkeit 1 mit der alten Geschwindigkeit wird dieses Streifengebiet von einem Sättigungssprung durchlaufen, der im Vergleich zu dem alten Sättigungssprung eine bedeutend niedrigere Intensität  $[S]$  und höhere Geschwindigkeit besitzt. Beim Austritt aus dem Streifengebiet nimmt der Sprung jedoch wieder seine alte Intensität und Geschwindigkeit an. Die Sättigung bleibt innerhalb des Streifengebietes bedeutend niedriger als außerhalb (Abb. 10E, F) und ändert sich bei Injektion mehrerer Porenvolumina nur wenig.

Würde im ganzen Strömungsgebiet die gleiche  $F$ -Kurve gelten, so dürfte nach dem im vorhergehenden Abschnitt Gesagten ( $S' < S_{1\max}$ ) der Sättigungssprung bei Austritt aus dem Streifengebiet seine Intensität nicht erhöhen. Da überdies die Sättigung im Streifengebiet nach Passieren des Sprunges — zumindest anfänglich — konstant bleibt, muß durch je einen Querschnitt innerhalb und außerhalb des Streifens dieselbe Menge an Flüssigkeit 1 strömen. Die Funktion  $F(S) = V_1/V_{\text{tot}}$  hat also für zwei gänzlich verschiedene Sättigungen denselben Wert, d. h. im Streifengebiet gilt eine andere  $F$ -Kurve als im übrigen Strömungsgebiet.

Ein ähnliches, aber quantitativ anderes Resultat ergibt sich wenn das Streifengebiet niedriger Sättigung dadurch erzeugt wird, daß man die erst injizierte Flüssigkeit 1 durch die am oberen Reservoirende einströmende Flüssigkeit 2 wieder teilweise verdrängt.

Eine drastische Änderung der  $F(S)$ -Kurve kann für ein gegebenes Flüssigkeiten-Festkörper-System

aber auch aus einem ganz anderen Grunde erfolgen. Im Gegensatz zu dem oben betrachteten Fall ist diese Änderung jedoch nicht durch eine andere „mikroskopische“ Verteilung der Flüssigkeiten bedingt, sondern durch eine Änderung des „makroskopischen“ Strömungsbildes, welche ihrerseits durch *Instabilität* des Sättigungssprunges verursacht wird.

Unter der vereinfachenden Annahme, daß der Sättigungssprung das Strömungsgebiet in zwei Bereiche scheidet, welche jeweils nur von einer der beiden Flüssigkeiten erfüllt sind, fand S. HILL [10] für vertikale, aufwärts gerichtete Strömung als Kriterium für Instabilität der Sprungfläche:

$$\left. \begin{aligned} V > V_c \\ \frac{\eta_2 - \eta_1}{K} \cdot V_c + (\varrho_2 - \varrho_1) g = 0. \end{aligned} \right\} \quad (47)$$

Hierin bedeutet  $V$  den Betrag der Filtergeschwindigkeit, der einen bestimmten durch obige Gleichung definierten kritischen Wert  $V_c$  überschreiten muß. Die mit dem Index 1 versehenen Größen beziehen sich auf die verdrängende Flüssigkeit,  $\varrho$  bedeutet die Dichte und  $g$  die Schwerkraftbeschleunigung. Für vertikale, abwärts gerichtete Strömung ändern sich Ungleichheitszeichen und Vorzeichen von  $g$  in (47).

Wie in einer eingehenden, theoretischen und experimentellen Untersuchung durch R. L. CHUOKE, P. VAN MEURS und C. VAN DER POEL [11] gezeigt wurde, ist Bedingung (47) wohl notwendig für das Anwachsen einer infinitesimalen Störung der Grenzfläche, jedoch nicht hinreichend. Die Instabilitätsbedingung (47) berücksichtigt nämlich nur die viskosen Reibungskräfte und die Schwerkraft, nicht aber den stabilisierenden Einfluß der Grenzflächenspannung, der sich darin äußert, daß bei jeder isothermen Deformation der ebenen Grenzfläche mechanische Arbeit geleistet werden muß, um die totale freie Energie der Grenzfläche zu erhöhen. In der genannten Untersuchung wird dieser stabilisierende Einfluß der Grenzfläche berücksichtigt und die notwendige und hinreichende Bedingung für Instabilität der Grenzfläche abgeleitet. Da die bei einer infinitesimalen Störung der ebenen Grenzfläche zu leistende Deformationsarbeit von der mittleren Krümmung der Störung abhängt, hemmt die Grenzfläche das Anwachsen von Störungen unterschiedlicher Krümmung in verschiedenem Maße. Auch wenn Bedingung (47) erfüllt ist, werden die infinitesimalen Störungen, deren mittlere Krümmung einen gewissen kritischen Wert überschreitet, durch die Grenzfläche vollständig unterdrückt. Weiter gibt es, wie in der zitierten Arbeit gezeigt wird, einen bestimmten, für das Anwachsen infinitesimaler Störungskomponenten günstigsten Krümmungswert. Die Störungskomponenten welche diese Krümmung besitzen, werden daher über alle anderen Störungen dominieren. Da nun aber die durch die Unregelmäßigkeiten des porösen Mediums an der makroskopischen Grenzfläche der beiden Flüssigkeiten induzierten Störungen vollkommen regellos über die Grenzfläche verteilt sind und Komponenten der verschiedensten Krümmungen enthalten, führt das Dominieren einer bestimmten Störungskrümmung zu einer regelmäßigen, sinusähnlichen, infinitesimalen Deformation der instabilen Grenzfläche. Aus den anfänglich infinitesimalen Erhebungen entwickeln sich makroskopische, fingerähnliche Ausstülpungen der Grenzfläche, welche in

Strömungsrichtung anwachsen. Das so entstehende Strömungsbild unterscheidet sich also auffällig von den in Abb. 7 und 10 gezeigten Strömungsvorgängen mit stabilen Sättigungsfrenten.

Ist die Anzahl der entstehenden „Strömungsfinger“ groß genug, um in jedem makroskopischen Volumenelement einen Sättigungswert definieren zu können, welcher von den zufälligen lokalen Schwankungen der Dicke und Anzahl der dieses Volumenelement durchsetzenden Strömungsfinger unabhängig ist, so behält der Begriff der „relativen“ Permeabilitäten bzw. der  $F(S)$ -Kurve einen Sinn. Dies ist der statistischen Regelmäßigkeit der instabilen Strömung zu danken, welche bewirkt, daß man bei gleicher Filtergeschwindigkeit  $V > V_c$  am selben Flüssigkeiten-Festkörper-System auch stets die gleiche  $F(S)$ -Kurve findet. Die experimentelle Bestimmung kann nach einer einfachen von H. J. WELGE [8] angegebenen Methode erfolgen. Es ist zu erwarten, daß sich die drastische Änderung des Strömungsbildes bei Übergang zur instabilen Strömung auch in einer entsprechenden Änderung der relativen Permeabilitäten bzw. der  $F$ -Kurve auswirkt.

Eine, an einem gegebenen System von Flüssigkeiten und porösem Körper ermittelte  $F$ -Kurve, darf also nicht als für dieses System schlechthin gültig betrachtet werden. Bei der Lösung eines konkreten Randwertproblems der Sättigungsgleichung (12) muß vielmehr die hinsichtlich Beginnsättigung und Stabilität bzw. Instabilität der Strömung, repräsentative  $F$ -Kurve verwendet werden.

### Zusammenfassung

Die eindimensionale Sättigungsverteilung in einem von zwei viskösen Flüssigkeiten langsam durchströmten, porösen Medium wird durch eine nichtlineare, partielle Differentialgleichung beschrieben, welche sich nach Vernachlässigung des Kapillardruckgradienten zu einer quasilinearen Differentialgleichung erster Ordnung reduziert. Diese reduzierte Gleichung liefert unter gewissen Voraussetzungen mehrdeutige stetige Lösungen, die physikalisch sinnlos sind. Um physikalisch sinnvolle Lösungen zu erhalten, ist man gezwungen sprunghafte Unstetigkeiten in der abhängigen Veränderlichen einzuführen. Zu einer mathematisch befriedigenden und durchsichtigen Behandlung quasi-

linearer Probleme gelangt man mit Hilfe der Charakteristikentheorie, die in der vorliegenden Arbeit angewandt wurde, um die verschiedenen, in der Sättigungsverteilung auftretenden Unstetigkeiten zu studieren.

Die Anwendung der Charakteristikentheorie liefert hierbei nicht nur eine einfache, für beliebige Randbedingungen brauchbare, graphische Lösungsmethode, sondern auch eine mathematische Begründung, die durch S. E. BUCKLEY und M. C. LEVERETT und durch H. J. WELGE angegebenen Methoden zur graphischen Bestimmung von unstetigen Sättigungsverteilungen weiter wurde für einen wichtigen Spezialfall einer Parameterdarstellung für Bewegung und Wachstum des „Sättigungssprunges“ angegeben, welche ausgestattet, in einfacher Weise den Grenzübergang von stetigen zu unstetigen Randbedingungen auszuführen.

Experimentelle Resultate wurden mitgeteilt, um zu zeigen, daß „Sättigungssprünge“ nicht nur als mathematische Vereinfachung des Strömungsvorganges aufzufassen sind, sondern auch wirklich auftretend. Abschließend wurden Schwierigkeiten besprochen, welche sich für die Anwendung der Theorie zufolge der Mehrdeutigkeit der experimentell zu bestimmenden relativen Permeabilitäten ergeben können.

Unseren Kollegen, Herrn Dr. H. BOLDER und Herrn Dr. H. BECKERS danken wir für wertvolle Diskussionen.

**Literatur:** [1] D'ARCY, H.: Les fontaines publiques de la ville de Dijon. Paris 1856. — [2] WYCKOFF, R. D., u. H. BOTSET: *Physics* **7**, 325 (1936). — [3] LEVERETT, M. C.: *Trans. Amer. Inst. Min. Metallurg Engrs.* **142**, 152 (1941). — [4] MURKAT, M., u. M. W. MERES: *Physics* **7**, 346 (1936). — [5] BUCKLEY, S. E., u. M. C. LEVERETT: *Trans. Amer. Inst. Min. Metallurg Engrs.* **146**, 107 (1942). — [6] CARDWELL, W. J.: *Trans. Amer. Inst. Min. Metallurg Engrs.* **216**, 271 (1959). — [7] SHELDON, J. W., B. ZONDER and W. T. CARDWELL: *Trans. Amer. Inst. Min. Metallurg Engrs.* **216**, 290 (1959). — [8] WELGE, H. J.: *Trans. Amer. Inst. Min. Metallurg Engrs.* **195**, 1 (1952). — [9] MEURS, P. VAN: *Trans. Amer. Inst. Min. Metallurg Engrs.* **210**, 295 (1957). — [10] HILL, S.: *Chem. Eng. Sci.* **1**, 248 (1952). — [11] CHOUKE, R. L., P. VAN MEURS and C. VAN DER POEL: *Trans. Amer. Inst. Min. Metallurg Engrs.* **216** (1959).

Dr. GEORG MANDL,

Koninklijke/Shell Exploratie en Productie Laboratorium,

JAN H. KRUIZINGA,

Koninklijke/Shell-Laboratorium, Amsterdam

(Shell Internationale Research Maatschappij N.V.)

## Zur röntgenographischen Ermittlung reflexverschiebender und verbreiternder Gitterverzerrungen unter Verwendung von Fourierreihen-Darstellungen

VON GERHARD K. SCHMIDT

Mit 6 Textabbildungen

(Eingegangen am 28. August 1960)

### 1. Einleitung und Aufgabenstellung

Bereits seit Jahren sind Verfahren bekannt, aus dem Intensitätsverlauf von Debye-Scherrer-Reflexen einer Probe Aussagen über Ausdehnung kohärenter Gitterbereiche (Teilchengröße) und reflexverbreiternder Gitterverzerrungen als Folge von Eigenspannungen II. und III. Art zu erhalten. Zwei unterschiedliche Auswertungsmethoden haben sich im Laufe der Zeit

herausgebildet. Die eine Methode arbeitet mit den Linienbreiten der Reflexe. Theoretische und experimentelle Untersuchungen dazu wurden ausführlich von A. KOCHENDÖRFER [1] und W. A. HALL [2] angestellt. Die andere Methode, von B. E. WARREN, B. L. AVERBACH [3] u. a. entwickelt, benutzt dagegen den gesamten Intensitätsverlauf eines Debye-Scherrer-Reflexes und liefert über Fourier-Reihendarstellungen



ebenfalls Teilchengröße und reflexverbreiternde Gitterverzerrungen. Der linienverschiebende Anteil der Eigenspannungen ist mit den 2 aufgezählten Methoden direkt nicht zu erfassen. Dazu müssen zusätzlich die Reflexverschiebungen des untersuchten Materials durch Vermessung der Intensitätsmaxima des spannungsfreien und des spannungsbehafteten Zustandes ermittelt werden. Auch genauere Verfahren, die von G. K. SCHMIDT [4] zusammengestellt und besprochen wurden, lassen sich zur Ermittlung der eigenspannungsbedingten Reflexverschiebung heranziehen.

Aufgabe vorliegender Arbeit ist nun, eindeutig zu zeigen, daß sich mit dem Fourier-Reihenverfahren von B. E. WARREN und B. L. AVERBACH unter Beachtung der Ergebnisse von A. KOCHENDÖRFER und U. WOLFSTIEG [5] geschlossen in einem Auswertungsgang Teilchengröße, linienverbreiternde Verzerrungen (Eigenspannungen II. und III. Art) und linienverschiebende Anteile (Eigenspannungen I. Art, homogene Eigenspannungen II. Art) errechnen lassen. Es werden dabei nicht wie bei herkömmlicher Auswertung nur die cos-Fourier-Koeffizienten, sondern zusätzlich auch die entsprechenden sin-Koeffizienten berücksichtigt. Dieser Sachverhalt läßt sich bei einer anderen Betrachtungsweise noch genauer folgendermaßen formulieren: Zur Auswertung werden bei komplexer Schreibweise der Fourier-Reihen nicht nur die Beträge, sondern auch die Phasenwinkel der komplexen Fourier-Koeffizienten herangezogen.

## 2. Fourierreihen-Verfahren

Die folgende Beschreibung der herkömmlichen Auswertungsmethode nach WARREN-AVERBACH soll die Grundlage für das Verständnis der Erweiterung des Verfahrens bilden. Um jedoch diesen einführenden Teil der Arbeit recht kurz zu halten, ist dabei auf die zweckmäßige Symbolik und auf die Ableitungen von KOCHENDÖRFER-WOLFSTIEG [5] zurückgegriffen worden. Danach soll auch im folgenden bedeuten:

- $\theta$  = zum Mittelpunkt eines Reflexes gehörender Bragg-scher Reflexionswinkel
- $\vartheta$  = laufender Reflexionswinkel
- $a_1$  = Kantenlänge einer kristallographischen Grundzelle, senkrecht zur reflektierenden Ebene
- $\lambda$  = Röntgen-Wellenlänge
- $(H = \frac{2a_1}{\lambda} \sin \theta)$  = Index der reflektierenden Netzebene, die auf (HOO) transformiert werden konnte
- $(h = \frac{2a_1}{\lambda} \sin \vartheta)$  =  $H$  entsprechende, laufende Lagekoordinate
- $(h' = h - H)$  = laufende Lagekoordinate mit  $H$  als Ursprung
- $e_n$  = Dehnung, zwischen Netzebenen mit dem Abstand  $n \cdot a_1$  gemessen
- $\bar{Z}_S$  = gemittelte Zellenzahl der senkrecht zur reflektierenden Netzebene liegenden Zellsäulen
- $\bar{L} = a_1 \cdot \bar{Z}_S$  = Teilchenausdehnung
- $A_{n;H}^V, B_{n;H}^V$  = durch die Gitterverzerrung bedingten  $n$ . cos- und sin-Fourier-Koeffizienten
- $A_n^T$  = durch die Teilchengröße gegebener  $n$ . cos-Koeffizient

Unter Benutzung dieser Bezeichnungen ist die äquatoriale Intensitätsverteilung eines Reflexes im  $h'$ -

Maßstab bei Teilchen- und Spannungsverbreiterung in Form einer Fourier-Reihe gegeben. Es ist:

$$J(h') \sim A_0 + 2 \cdot \sum_n \left\{ A_{n;H} \cdot \cos(2 \cdot \pi \cdot h' \cdot n) + B_{n;H} \cdot \sin(2 \cdot \pi \cdot h' \cdot n) \right\} \quad (1)$$

mit:

$$A_{n;H} = A_n^T \cdot A_{n;H}^V, \quad B_{n;H} = A_n^T \cdot B_{n;H}^V. \quad (2)$$

Bei geeigneter Normierung der Intensitätsfunktion läßt sich erreichen, daß  $A_0 = 1$  und folglich auch  $A_{0;H}^V = 1$  und  $A_0^T = 1$  sind. Dann gilt weiter:

$$\left. \begin{aligned} A_{n;H}^V &= \cos(2 \cdot \pi \cdot H \cdot n \cdot e_n); \\ B_{n;H}^V &= -\sin(2 \cdot \pi \cdot H \cdot n \cdot e_n) \end{aligned} \right\} \quad (3)$$

und für kleine  $n$ -Werte:

$$A_n^T = 1 - \frac{n}{\bar{Z}_S}. \quad (4)$$

Unter der Annahme, daß die Verteilungsfunktion der Gitterverzerrungen, bezogen auf die Lage des Schwerpunktes, symmetrisch ist, wird  $B_{n;H}^V = 0$ , und damit lautet Gl. (1):

$$J(h') \sim A_0 + 2 \cdot \sum_n (A_{n;H} \cdot \cos(2 \cdot \pi \cdot h' \cdot n)). \quad (5)$$

Gl. (5) erlaubt nun die Auswertung einer von Instrumenteneinflüssen nach dem Verfahren von A. R. STOKES [6] befreiten Intensitätsfunktion. Dabei wird zur separaten Ermittlung der Teilchengröße und der Verzerrungen die alleinige  $H$ -Abhängigkeit der  $A_{n;H}^V$  ausgenutzt. Bei Gaußscher Verteilung der Verzerrungen gilt wegen  $\ln A_{n;H}^V = -2 \cdot \pi^2 \cdot H^2 \cdot n^2 \cdot \bar{e}_n^2$  und Gl. (2):

$$\ln A_{n;H} = \ln A_n^T - 2 \cdot \pi^2 \cdot H^2 \cdot n^2 \cdot \bar{e}_n^2. \quad (6)$$

In Kurvendarstellungen  $\ln A_{n;H} = f(H^2)$  für verschiedene Ordnungen  $n$  ist  $\bar{e}_n^2$  und über  $A_n^T \bar{L}$  getrennt zu bestimmen. Weitere Einzelheiten zur Auswertung sind den Originalarbeiten und dem im 4. Abschnitt aufgeführten Beispiel zu entnehmen.

## 3. Erweitertes Fourier-Reihenverfahren

Die im 2. Abschnitt skizzierten Zusammenhänge lassen sich auf Untersuchungen von Proben anwenden, die neben einem Teilchengrößeneffekt eine zusätzliche Reflexverbreiterung durch eine unverschobene, symmetrische Verteilung der Verzerrungen zeigen. Es kann jedoch der Fall eintreten, daß bei einem untersuchten Materialblock diese Verteilungsfunktion als Folge von Eigenspannungen I. Art oder homogenen Eigenspannungen II. Art verschoben und mit einer geringen Unsymmetrie behaftet ist. Wie eine Auswertung unter diesen besonderen Verhältnissen so vorgenommen werden kann, daß alle Spannungsanteile über zugehörige Verzerrungen getrennt ermittelt werden können, soll in diesem Abschnitt beschrieben werden. Dabei wird von der Wirkung der Stapelfehler abgesehen, so daß also die Reflexionsverschiebung und die Unsymmetrie einzig und allein durch die Gitterverzerrung bedingt sind. Abb. 5 mit der  $A_n^T$ -Geraden des experimentellen Beispiels kann dafür angenähert als Bestätigung gelten.

Bezeichnet man mit  $g_n^*(e_n^*)$  die allgemeine Verteilungsfunktion der röntgenographisch in Erscheinung

tretenden Gitterverzerrungen, so scheint es zweckmäßig zu sein, zunächst festzulegen, was man unter dem Mittelwert der linienverschiebenden ( $\bar{e}'_n$ ) und der verbreiternden ( $\bar{e}_n$ ) Verzerrungen verstehen kann. In Abb. 1 sind die Mittelwerte für eine angenommene Verzerrungsverteilung schematisch eingezeichnet. Die Verzerrung  $\bar{e}'_n$  soll vom Ursprung, der dem spannungsfreien Zustand entspricht, bis zum Schwerpunkt der Verteilung führen. Die Größe  $\bar{e}_n$  soll die Wurzel aus dem bisher verwendeten quadratischen Mittelwert einer symmetrischen Verteilung  $q_n(e_n)$  sein, die sich

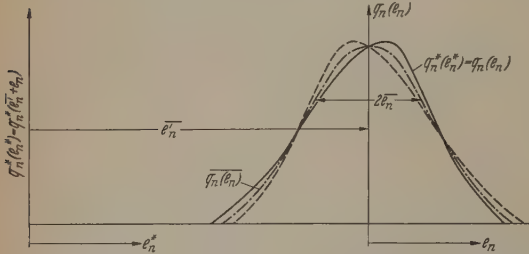


Abb. 1. Schematische Darstellung der unsymmetrischen, verschobenen Verzerrungsverteilung im  $e_n^*$ - und im  $e_n$ -System mit den Mittelwerten der linienverschiebenden ( $\bar{e}'_n$ ) und der reflexverbreiternden ( $\bar{e}_n$ ) Verzerrungsanteile

aus  $q_n^*(e_n^*)$  durch ein in Abb. 1 erkennbares Verfahren (Spiegeln an der Schwerpunktgeraden und Mittelung) bestimmen läßt.

Zur Berechnung der physikalisch zweckmäßig definierten  $\bar{e}'_n$ - und  $\bar{e}_n$ -Werte geht man von Gl. (3) aus. Es ist danach für eine normierte  $q_n^*(e_n^*)$ -Funktion

$$\left( \int_{-\infty}^{+\infty} q_n^*(e_n^*) \cdot d e_n^* = 1 \right) \text{ wegen } \bar{e}'_n + e_n = e_n^*:$$

$$\left. \begin{aligned} A_{n;H}^{*V} &= \overline{\cos(2 \cdot \pi \cdot H \cdot n \cdot e_n^*)} \\ &= \int_{-\infty}^{+\infty} q_n^*(e_n^*) \cdot \cos(2 \cdot \pi \cdot H \cdot n \cdot e_n^*) d e_n^* \\ &= \cos(2 \cdot \pi \cdot H \cdot n \cdot \bar{e}'_n) \times \\ &\quad \times \int_{-\infty}^{+\infty} q_n(e_n) \cdot \cos(2 \cdot \pi \cdot H \cdot n \cdot e_n) d e_n - \\ &\quad - \sin(2 \cdot \pi \cdot H \cdot n \cdot \bar{e}'_n) \times \\ &\quad \times \int_{-\infty}^{+\infty} q_n(e_n) \cdot \sin(2 \cdot \pi \cdot H \cdot n \cdot e_n) d e_n \\ &= \cos(2 \cdot \pi \cdot H \cdot n \cdot \bar{e}'_n) \cdot A_{n;H}^V - \\ &\quad - \sin(2 \cdot \pi \cdot H \cdot n \cdot \bar{e}'_n) \cdot B_{n;H}^V \end{aligned} \right\} \quad (7)$$

Entsprechend wird:

$$\left. \begin{aligned} B_{n;H}^{*V} &= -\overline{\sin(2 \cdot \pi \cdot H \cdot n \cdot e_n)} \\ &= -\sin(2 \cdot \pi \cdot H \cdot n \cdot \bar{e}'_n) \cdot A_{n;H}^V - \\ &\quad - \cos(2 \cdot \pi \cdot H \cdot n \cdot \bar{e}'_n) \cdot B_{n;H}^V \end{aligned} \right\} \quad (8)$$

Die  $A_{n;H}^V$ - und  $B_{n;H}^V$ -Größen stellen die cos- und sin-Fourier-Koeffizienten der  $q_n(e_n)$ -Verteilung, bezogen auf den Schwerpunkt, dar. Bei einer zum Schwerpunkt symmetrischen Verteilung wird  $B_{n;H}^V = 0$  und man erhält:

$$\left. \begin{aligned} A_{n;H}^{*V} &= \cos(2 \cdot \pi \cdot H \cdot n \cdot \bar{e}'_n) \cdot A_{n;H}^V \\ B_{n;H}^{*V} &= -\sin(2 \cdot \pi \cdot H \cdot n \cdot \bar{e}'_n) \cdot A_{n;H}^V \end{aligned} \right\} \quad (9)$$

Zeigt jedoch die  $q_n(e_n)$ -Funktion eine geringe Unsymmetrie, so läßt sich mit Hilfe der Definitionsgleichung

für den Schwerpunkt nachweisen, daß für kleine  $H \cdot n$  Werte  $B_{n;H}^V \approx 0$ . Es gilt nämlich:

$$\left. \begin{aligned} B_{n;H}^V &= \int_{-\infty}^{+\infty} q_n(e_n) \cdot \sin(2 \cdot \pi \cdot H \cdot n \cdot e_n) d e_n \\ &\approx \int_{-\infty}^{+\infty} q_n(e_n) \cdot (2 \cdot \pi \cdot H \cdot n \cdot e_n) d e_n = 0. \end{aligned} \right\} \quad (10)$$

Damit wird aus Gl. (9):

$$\frac{B_{n;H}^{*V}}{A_{n;H}^{*V}} = -\tan(2 \cdot \pi \cdot H \cdot n \cdot \bar{e}'_n), \quad (11)$$

$$\sqrt{(A_{n;H}^{*V})^2 + (B_{n;H}^{*V})^2} = A_{n;H}^V = \overline{\cos(2 \cdot \pi \cdot H \cdot n \cdot e_n)} \quad (12)$$

oder unter Berücksichtigung der Gl. (2) bei zusätzlicher Teilchenverbreiterung:

$$\frac{B_{n;H}^*}{A_{n;H}^*} = \frac{A_{n;H}^T \cdot B_{n;H}^V}{A_{n;H}^T \cdot A_{n;H}^V} = -\tan(2 \cdot \pi \cdot H \cdot n \cdot \bar{e}'_n), \quad (13)$$

$$\left. \begin{aligned} \sqrt{(A_{n;H}^*)^2 + (B_{n;H}^*)^2} \\ &= A_{n;H}^T \cdot \sqrt{(A_{n;H}^V)^2 + (B_{n;H}^V)^2} = A_{n;H}^T \cdot A_{n;H}^V \\ &= A_{n;H}^T \cdot \overline{\cos(2 \cdot \pi \cdot H \cdot n \cdot e_n)}. \end{aligned} \right\} \quad (14)$$

Mit Gl. (13) ist man prinzipiell in der Lage, aus den nach STOKES reduzierten  $A_{n;H}^*$ - und  $B_{n;H}^*$ -Koeffizienten der Gl. (1) den linienverschiebenden Verzerrungsanteil und nach Gl. (14) in Verbindung mit Gl. (6) in bereits bekannter Weise die verbreiternden Verzerrungen und die Teilchengröße zu ermitteln.

#### 4. Experimentelle Bestätigung des Verfahrens

##### a) Methodik

Zur experimentellen Bestätigung des erweiterten Fourier-Reihenverfahrens wurden Versuche an einer plastisch deformierten Kupferstab durchgeführt, die neben Teilchengrößeneffekten linienverbreiternde und ebenfalls linienverschiebende Verzerrungen als Folge von homogenen Eigenspannungen II. Art erkennen läßt. Die bleibende plastische Deformation von 50% Längenänderung des polykristallinen Kupferstabes erfolgte in einer Zerreißmaschine. Eine zweite Kupferprobe wurde einer Wärmebehandlung so unterworfen, daß sie als praktisch spannungsfrei gelten konnte. Größere Teilchenausdehnungen wurden bei ihr ebenfalls vorausgesetzt. Aus den 2 Kupferstäben ließe sich 2 Scheiben ausschneiden, die in den Präparatträger für Texturuntersuchungen nach WASSERMAN paßten. Die Richtung der bei der Deformation angewendeten Kraft lag in der Scheibenebene. Mit Hilfe eines Zählrohr-Goniometers nach BERTHOLD-SEIFER war es bei  $\alpha$ -Eisenstrahlung möglich, sowohl von der spannungsfreien als auch von der verspannten Kupferprobe die für eine Auswertung günstig liegenden (111)- und (222)-Intensitätskurven zu erhalten. Blendeneinstellungen, Geschwindigkeit des Zählrohrarme Papervorschub und Trägheit mußten so abgestimmt werden, daß keine Kurvenverzerrungen auftraten.

In diesem Zusammenhang muß besonders auf Effekte aufmerksam gemacht werden, die zu größeren Fehlern bei der Intensitätsverteilung führen können. Der Präparatträger mit der Vorrichtung zur Probenbewegung lieferte nicht die zur exakten Intensitätsregistrierung benötigte Lagenhäufigkeit der Kupfer



Tabelle. Fourier-Koeffizienten der untersuchten Proben

n	H = 1 (111)-Reflex				H = 2 (222)-Reflex			
	30	60	90	120	36	72	108	144
$A_{n;H}^{(g)}$	+0,935	+0,768	+0,561	+0,374	+0,820	+0,461	+0,217	+0,169
$B_{n;H}^{(g)}$	+0,050	+0,081	+0,086	+0,068	+0,261	+0,276	+0,094	+0,074
$A_{n;H}^{(h)}$	+0,917	+0,710	+0,444	+0,282	+0,739	+0,296	+0,085	+0,055
$B_{n;H}^{(h)}$	+0,058	+0,093	+0,096	+0,072	+0,277	+0,235	+0,068	+0,001
$A_{n;H}^*$	+0,981	+0,927	+0,848	+0,763	+0,915	+0,698	+0,444	+0,271
$B_{n;H}^*$	+0,010	+0,023	+0,041	+0,053	+0,047	+0,093	+0,120	+0,119

krystallite. Ein vor dem Zählrohrspalt belichteter Röntgenfilm zeigte auch bei bewegtem Präparat noch ungleichmäßig belegte Debye-Scherrer-Ringe. Erst eine zusätzliche, schnelle Präparatdrehung um die Scheibennormale bewirkte eine gleichmäßige Belegung der Interferenzringe. Die Drehung wurde durch eine Zusatzeinrichtung zum Texturprobenhalter möglich gemacht. Weiter war bei der Präparatherstellung zu beachten, daß die bestrahlte Präparatfläche möglichst plan ist. Es läßt sich nämlich durch rein geometrische Betrachtungen zeigen, daß Röntgenreflexe bei kleinen  $\vartheta$ -Winkeln durch Präparatschwankung und Dejustierung beträchtliche Lageverschiebungen erfahren. Experimentell konnten sie nachgewiesen werden. Eine

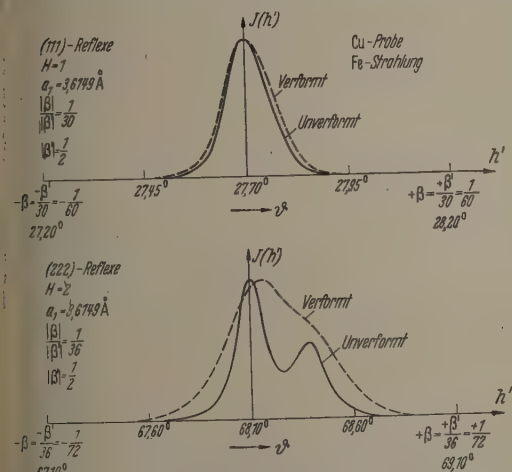


Abb. 2. Relative Intensitäten der (111)- und (222)-Reflexe des unverformten und verformten Kupfermaterials in Abhängigkeit von  $h'$  oder  $\vartheta$

weitere Fehlerquelle stellte die Einrichtung zur Winkelmarkierung auf dem Registrierstreifen war. Bei den zunächst durchgeführten Messungen waren die Winkelmarken nicht genau reproduzierbar. Abhilfe konnte dadurch geschaffen werden, daß man bei einer vorgegebenen Abtastrichtung und einem abgelesenen Winkelminutenwert mit der Hand eine Marke auf den Registrierstreifen gab.

Die Reflexkurven wurden mehrmals registriert und dann gemittelt. Gegebenenfalls mußte der Intensitätsverlauf schrittweise auf bekannte Art unter Benutzung des Schreibers abgetastet werden. Aus Abb. 2 sind die gemessenen Intensitätsverteilungen bei einem zweckmäßig gewählten Ordinatenmaßstab zu ersehen.

### b) Auswertung

Die Auswertung forderte eine Fourier-Analyse der Intensitätsfunktion. Dabei mußte ein sehr großes  $\beta'$ -Periodizitätsintervall im  $h'$ -Maßstab von  $-\frac{1}{2} = -\beta' \leq h' < +\beta' = +\frac{1}{2}$  vorgegeben werden. Rechnen zweckmäßiger erwies sich jedoch, einen kleineren

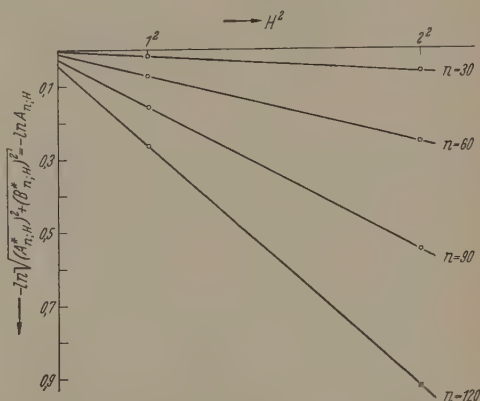


Abb. 3. Kurvendarstellung zur Auswertung nach Gl. (14) und Gl. (6)

$\beta$ -Bereich  $-\beta \leq h' < +\beta$ , der ebenfalls sämtliche von Null verschiedenen Funktionswerte enthielt, festzulegen und zu verwenden. Durch Umformung der Definitionsgleichungen der Fourier-Koeffizienten und unter Verwendung des Verhältnisses der  $\beta'$ - und  $\beta$ -Grenzen erhielt man einen Zusammenhang, der es erlaubte, die Koeffizienten des kleinen Intervalls in die des großen umzurechnen.

$$\frac{|\beta|}{|\beta'|} = K_H \leq 1$$

$$A_{n;H}^* = \frac{1}{2 \cdot \beta'} \cdot \int_{-\beta'}^{+\beta'} J(h') \cdot \cos\left(\frac{\pi}{\beta'} \cdot n \cdot h'\right) \cdot dh' \quad (15)$$

$$= \frac{K_H}{2 \cdot \beta} \cdot \int_{-\beta}^{+\beta} J(h') \cdot \cos\left(\frac{\pi}{\beta} \cdot (K_H \cdot n) \cdot h'\right) \cdot dh',$$

$$B_{n;H}^* = \frac{1}{2 \cdot \beta'} \cdot \int_{-\beta'}^{+\beta'} J(h') \cdot \sin\left(\frac{\pi}{\beta'} \cdot n \cdot h'\right) \cdot dh' \quad (16)$$

$$= \frac{K_H}{2 \cdot \beta} \cdot \int_{-\beta}^{+\beta} J(h') \cdot \cos\left(\frac{\pi}{\beta} \cdot (K_H \cdot n) \cdot h'\right) \cdot dh'.$$

Nach Gl. (16) sind die auf  $A_0^* = 1$  normierten Fourier-Koeffizienten ( $K_H \cdot n$ )-ter Ordnung des  $\beta$ -Intervalls

identisch mit den Koeffizienten  $n$ -ter Ordnung des  $\beta'$ -Bereiches.

In der Tabelle sind die aus den Kurven der Abb. 2 ermittelten Fourier-Koeffizienten eingetragen. Die

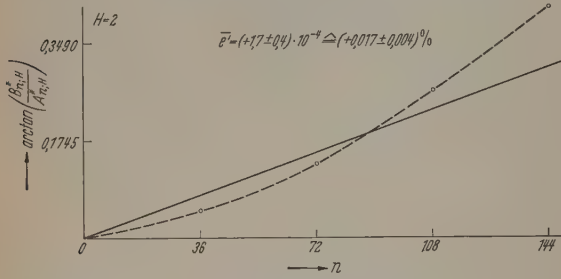


Abb. 4. Darstellung  $\arctan\left(\frac{B_{n,H}^*}{A_{n,H}^*}\right)$  gegen  $n$  zur Ermittlung des Mittelwertes reflexverschiebender Verzerrungen  $\bar{e}'$  nach Gl. (18)

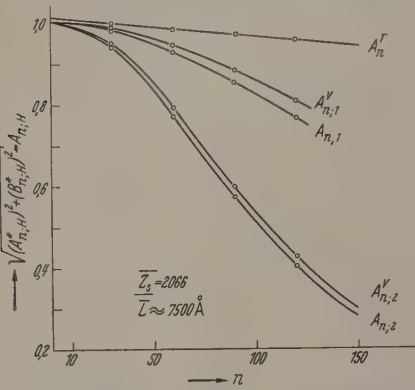


Abb. 5. Fourier-Koeffizienten-Anteile der zur symmetrischen Verteilung  $q_n(e_n)$  gehörenden Intensitätskurven für  $H=1$  und  $H=2$

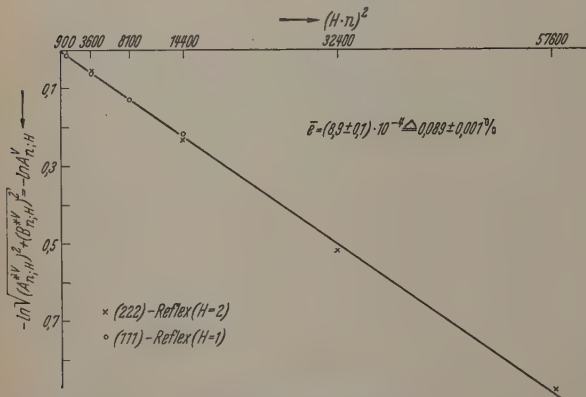


Abb. 6. Kontrolle der angenommenen  $q_n(e_n)$ -Kurvenform gemäß Gln. (12) und (6)

$A_{n,H}^*$ - und  $B_{n,H}^*$ -Werte ergaben sich nach dem Stokeschen Verfahren aus den  $g(h')$ -Koeffizienten ( $A_{n,H}^{(g)}$ ;  $B_{n,H}^{(g)}$ ) des unverspannten und den  $h(h')$ -Koeffizienten ( $A_{n,H}^{(h)}$ ;  $B_{n,H}^{(h)}$ ) des verspannten Kupferstabes. Die  $A_{n,H}^*$ ;  $B_{n,H}^*$ -Werte lieferten nach Gl. (13) den reflexverschiebenden Anteil der Verzerrungen  $\bar{e}'_n$ .

Die weitere Auswertung verlangte die Darstellung (Abb. 3)

$$\ln \sqrt{(A_{n,H}^*)^2 + (B_{n,H}^*)^2} = \ln A_{n,H} = f(H^2) \quad (17)$$

für verschiedene Ordnungen  $n$ , die Extrapolation der Geraden bis  $H=0$  zur Ermittlung von  $A_n^T$  und die anschließende Berechnung der  $\bar{e}'_n$ - und  $\bar{Z}_S$ -Werte gemäß Gln. (14), (6), (4).

### c) Ergebnisse und Diskussion

Zur Bestimmung des mittleren  $\bar{e}'$ -Verzerrungsanteils wurden die  $n \cdot \bar{e}'_n$ -Werte für  $H=2$  nach Gl. (13) aus

$$n \cdot \bar{e}'_n = \frac{1}{2\pi H} \cdot \arctan\left(-\frac{B_{n,H}^*}{A_{n,H}^*}\right) \quad (18)$$

berechnet und in Abhängigkeit von  $n$  in Abb. 4 eingetragen. Die Mittelungsgerade lieferte  $\bar{e}' = (+1,7 \pm 0,4) \cdot 10^{-4} \pm (+0,017 \pm 0,004) \%$ . Von einer entsprechenden Auswertung des bei kleinem  $\theta'$  Winkel liegenden Reflexes 1. Ordnung ( $H=1$ ) wurde abgesehen, da aus bereits angeführten Gründen seine Lagekoordinate mit größeren Fehlern behaftet sein mußte.

Die Abb. 3 zeigt für einige  $n$ -Werte die Kurven Darstellungen nach Gl. (17). Aus den Geraden ließe sich  $\bar{Z}_S$  oder  $\bar{L}$  mit den Ordinatenabschnitten  $-\ln A_n^T$  und ebenfalls  $\bar{e}'_n$  aus dem Anstieg errechnen. Dieser Auswertungsgang wurde in vorliegendem Fall jedoch nicht beschritten. Es ist übersichtlicher, mit den  $A_n^T$ -Werten der Abb. 3 zunächst über Gl. (14) die zugehörigen  $A_{n,H}^T$ -Koeffizienten zu bestimmen. Die Abb. 5 enthält die berechneten Fourier-Koeffizienten für  $H=1$  und 2. Dem  $A_n^T$ -Kursverlauf ist zu entnehmen, daß in dem  $n$ -Meßbereich die geforderte Linearität nach Gl. (4) erfüllt ist. Aus der dadurch möglichen Extrapolation auf  $A_n^T=0$  ergab sich  $\bar{Z}_S=2066$  und  $\bar{L} \approx 7500$  Å. Bei Verwendung sämtlicher  $A_{n,H}^T$ -Werte der Abb. 5 für eine Darstellung  $\ln A_{n,H}^T = f(H^2 \cdot n^2)$  mußte sich bei Gaußscher Verteilung eine Gerade ergeben. Abb. 6 zeigt die gute Übereinstimmung der Meßpunkte für  $H=1$  und 2 mit den Funktionswerten der Geraden, aus der schließlich dann der reflexverbreiternde Verzerrungsanteil  $\bar{e} = (8,9 \pm 0,1) \cdot 10^{-4} = (0,089 \pm 0,001) \%$  errechnet werden konnte.

Über diese Zahlenangaben hinaus ließ sich eine weitere Aussage über die  $q_n^*(e_n^*)$ -Funktion machen. Bei symmetrisch zum Schwerpunktkurveverlaufender Verteilung müßten die Meßpunkte der Abb. 3 auf der Geraden liegen. Aus vorhandenen Abweichungen von der Geradenfunktion konnten jedoch bei Berücksichtigung der  $B_{n,H}^T$  in den Gln. (7), (8) oder nach kurzen Betrachtungen von H. G. MÜLLER, G. K. SCHMIDT [7] Rückschlüsse über die Art der Unsymmetrie gezogen werden. Die  $q_n^*(e_n^*)$ -Verteilung der untersuchten Kupferprobe besaß also eine Schwerpunkt-Maximum-Lage, wie sie allerdings mit übertriebenen Maßstäben auch in Abb. 1 physikalisch wahrscheinlich dargestellt wurde. Eine Gauß-Funktion war die Verteilung der aus  $q_n^*(e_n^*)$  hervorgegangenen  $q_n(e_n)$ -Funktion.

### Zusammenfassung

Das herkömmliche Fourier-Reihenverfahren zum röntgenographischen Bestimmung der Teilchengröße



der linienverbreiternden Verzerrungen verwendet zur Auswertung nur die Größe der cos-Fourier-Koeffizienten der von Instrumenteneinflüssen befreiten Intensitätsfunktionen. Vorliegende Arbeit befaßt sich mit einer Erweiterung des Verfahrens, so daß bei komplexen Proben zusätzlich auch reflexverschiebende Verzerrungen aus den cos- und den sin-Koeffizienten ermittelt werden können. Eine experimentelle Überprüfung der Methode bei plastisch geredemtem Kupfer (0,5%-Reckgrad) lieferte in [111]-Richtung eine Teilengröße  $\bar{L} \approx 7500 \text{ \AA}$  mit reflexverschiebenden Verzerrungen  $\bar{\epsilon}' = +1,7 \cdot 10^{-4}$  und verbreiternden Verzerrungen  $\bar{\epsilon} = \pm 8,9 \cdot 10^{-4}$ .

Herrn Prof. Dr. H. G. MÜLLER danke ich für die große Unterstützung bei der Durchführung dieser

Arbeit und für das fördernde Interesse. Desgleichen sei Frau Prof. Dr. BOLL-DORNBERGER vom Institut für Strukturforschung der Deutschen Akademie der Wissenschaften zu Berlin für die Überlassung eines Texturprobenhalters nach WASSERMANN Dank gesagt.

**Literatur:** [1] KOCHENDÖRFER, A.: Z. Kristallogr. A **105**, 393 (1944). — [2] HALL, W. H.: Proc. Phys. Soc. Lond. A **62**, 741 (1949). — [3] WARREN, B. E., and B. L. AVERBACH: J. Appl. Phys. **21**, 595 (1950). — [4] SCHMIDT, G. K.: Z. angew. Phys. **8**, 347 (1960). — [5] KOCHENDÖRFER, A., u. U. WOLFS-TRIEG: Z. Elektrochem. **61**, 83 (1957). — [6] STOKES, A. R.: Proc. Phys. Soc. Lond. A **61**, 382 (1948). — [7] MÜLLER, H. G., u. G. K. SCHMIDT: Z. Metallk. **49**, 376 (1958).

Dr. GERHARD K. SCHMIDT,  
Physikalisches Institut der Hochschule  
für Verkehrswesen, Dresden

## Über Messungen von Dosis-build-up-Faktoren für Strahlenschutz Zwecke

VON HEINRICH GEORG EBERT

Mit 7 Textabbildungen

(Eingegangen am 9. September 1960)

Bei der Herstellung von Strahlenschutzräumen ist die Problemstellung im allgemeinen die, einen Raum durch eine Schutzwand so gegen einen Röntgen- oder  $\gamma$ -Strahler abzuschirmen, daß z.B. für Personen in dem Raum gewisse maximale Strahlendosen nicht überschritten werden. Zur Berechnung der erforderlichen Stärke  $x$  der Schutzwand verwendet man gewöhnlich zwei Materialkonstanten, und zwar den Schwächungskoeffizienten  $\mu$  und den Dosis-build-up-Faktor  $B$  [5], [6]. Die Definition des  $\mu$  darf als bekannt vorausgesetzt werden, zum Begriff des Dosis-build-up-Faktors  $B$ , wie er in der vorliegenden Arbeit verwendet werden soll, sind jedoch einige kurze Erklärungen notwendig.

Der Dosis-build-up-Faktor ist ein reiner Korrekturfaktor, der auf relativ einfache Art zu berücksichtigen gestattet, daß in der Wand bei der Schwächung der Strahlung nicht nur Absorptionsprozesse ablaufen, sondern ebenfalls Strahlung gestreut wird. Dadurch ist die Dosisleistung  $D$  in einem Punkte  $P$  größer, als es sich rechnerisch unter alleiniger Anwendung des Schwächungsgesetzes ergeben würde.  $B$  ist also gleich dem Quotienten aus der wirklich vorhandenen Dosisleistung  $D$  und der Dosisleistung  $D_0$ , welche sich nach dem exponentiellen Schwächungsgesetz aus der Dosisleistung  $D_0^0$  des Strahlers — am gleichen Ort  $P$  ohne die Schutzwand — berechnen läßt:

$$B = D/D_0 \quad (1)$$

$$D_0 = D_0^0 e^{-\mu x} \quad (2)$$

$D_0$  ist identisch mit der Dosisleistung, die ausschließlich durch ungestreute Quanten hervorgerufen wird; daher läßt sich für eine monochromatische Strahlung, für welche  $\mu$  konstant ist, bei bekanntem  $B$  die Dosisleistung  $D$  berechnen; ungeachtet der Tatsache, daß die monochromatische Strahlung beim Durchgang durch die Wand in ein breites Spektrum verwandelt wird. Dieser Vorgang beruht ja auf der Streuung und soll gerade durch  $B$  und nicht durch eine Änderung des  $\mu$  erfaßt werden, welche analytisch

nur schwer durchzuführen wäre. (Letzterem entspricht auch die Angabe einer Änderung der Halbwertschicht des für die Wand verwendeten Materials in Abhängigkeit von der Dicke der durchstrahlten Schicht, welche in ihrer Wirkung schwer zu übersehen ist [8].)

$D$  und damit auch  $B$  hängen ab vom speziellen Material der Wand, von ihren geometrischen Verhältnissen sowie von der Strahlenqualität. Für den im Strahlenschutz allerdings selten vorkommenden Fall, daß vom Strahler nur ein enges Strahlenbündel auf die Wand oder den Absorber fällt, ist  $D = D_0$  und  $B = 1$ . Dies gilt jedoch nur, wenn das Bündel einen genügend engen Querschnitt aufweist und nicht eine überwiegende Vorwärtstreuung der Strahlung erfolgt. In allen anderen Fällen ist  $B \geq 1$ . Der build-up-Faktor erreicht ein Maximum, wenn der Öffnungswinkel des von der Wand auf den Punkt  $P$  fallenden Strahlenbündels  $180^\circ$  beträgt (z.B. wenn die Wand unendlich ausgedehnt ist und bestrahlt wird). Für diesen besonderen Fall des Dosis-build-up-Faktors wird im folgenden die Bezeichnung  $B_\infty$  gewählt.  $B_\infty$  ist aus zwei Gründen interessant: Einmal läßt es sich unter diesen geometrischen Verhältnissen meßtechnisch exakt bestimmen (im Gegensatz dazu steht die starke Abhängigkeit des Dosis-build-up-Faktors von den geometrischen Verhältnissen unter anderen Bedingungen). Zum zweiten ermöglicht er die Berechnung der Maximaldosen, welche hinter einer ausgedehnten Schutzwand wirksam werden können.

Selbstverständlich lassen sich build-up-Faktoren auch auf andere Größen, welche eine Strahlung kennzeichnen, beziehen [9]; das geschieht z.B. beim Energie-build-up-Faktor. In dieser Arbeit wird der Dosis-build-up-Faktor benutzt, weil er im Hinblick auf das Ziel der Untersuchungen am zweckmäßigsten erschien; denn es handelt sich vorwiegend um den Strahlenschutz auf biologischem und medizinischem Gebiet, bei welchem die Strahlenbelastung durch die Dosis ausgedrückt wird.

Die in der Literatur angegebenen, theoretisch und teilweise experimentell ermittelten Dosis-build-up-Faktoren  $B^*$  [2], [3], [4], [7], [9], [10], [11], [12], [14],

[15], [16] haben eine etwas andere Bedeutung als die oben beschriebene Größe  $B_{\infty}$ . Sie berücksichtigen zusätzlich die Rückstreuung aus dem Absorber, wel-

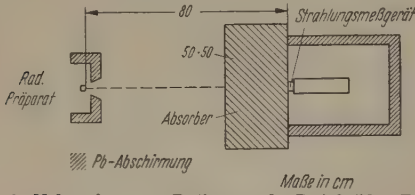


Abb. 1. Meßanordnung zur Bestimmung des Dosis-build-up-Faktors

cher in diesem Fall auch den Punkt  $P$  umgibt, gelten also für einen Strahler und einen Punkt  $P$ , welche beide innerhalb eines unendlich ausgedehnten Mediums

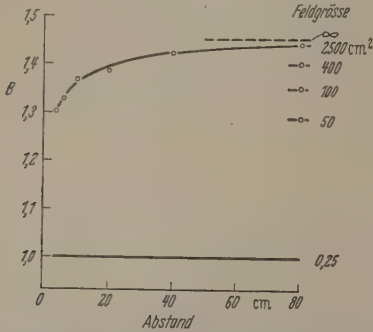


Abb. 2. Dosis-build-up-Faktor  $B$  als Funktion des Abstandes Strahlenquelle—Meßinstrument für verschiedene Feldgrößen.  $^{60}\text{Co}$ -Strahlung, 20 mm Pb-Wand, Meßgerät an der Wand anliegend

liegen. Aus Literaturangaben [1], [2], [13] kann entnommen werden, daß sich ein kleinerer Dosis-build-up-Faktor ergibt beim Übergang vom räumlich

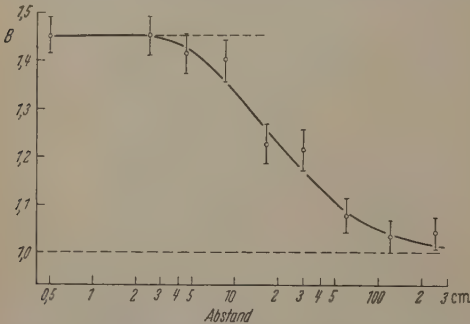


Abb. 3. Dosis-build-up-Faktor  $B$  als Funktion des Abstandes Absorber—Strahlungsmeßgerät.  $^{60}\text{Co}$ -Strahlung, 20 mm Pb-Wand, Feldgröße 2500  $\text{cm}^2$ , Abstand Strahler—Absorberrückseite = 80 cm

unendlichen zu einem flächenhaft unendlichen Absorber, also einer Wand mit der Schichtdicke  $x$ . Damit erhält man für die drei Formen des Dosis-build-up-Faktors die Beziehung

$$B \leq B_{\infty} \leq B^+ \quad (3)$$

Aus dem oben Gesagten ergeben sich die Bedingungen für eine Messung des  $B_{\infty}$ : Es muß versucht werden, den Öffnungswinkel des vom Meßgerät aufgenommenen Strahlenbündels gleich  $180^\circ$  zu machen. Da für die Messung nur in ihrer Ausdehnung begrenzte Wandflächen zur Verfügung stehen, wird das Meß-

instrument möglichst dicht an die Wandoberfläche herangebracht, wie es in Abb. 1 in bekannter Weise dargestellt ist. Ferner muß das Meßinstrument einem Bereich von  $180^\circ$  richtungsunempfindlich sein und eine Dosismessung gestatten. Die Abschirmung sollte so angebracht werden, daß sie den Meßvorgang nicht beeinträchtigt. Es ist darauf achten, daß der Nulleffekt eliminiert wird und keine Verfälschung des Meßergebnisses bringt, damit keine Abhängigkeit der Größe der Dosis-build-up-Faktor von der Art der Abschirmung und der Größe des Nulleffekts eintritt.

Abb. 2 zeigt den Einfluß der Feldgröße [8] der bestrahlten Wand auf die Größe des Dosis-build-up-Faktors. Die obere gestrichelte mit  $\infty$  bezeichnete Linie gibt den Wert des Dosis-build-up-Faktors wieder, welcher für einen punktförmigen Strahler aus der Literatur [9] entnommen wurde. Es ist ersichtlich, daß innerhalb der Fehlergrenzen

$$B_{2500} = B^+$$

ist. Daraus folgt zusammen mit (3), daß in diesem Falle  $B_{\infty}$  gemessen wurde. Der Abstand des Strahlungsmeßgerätes vom Strahler betrug 80 cm. Falls dieser Abstand verkleinert wird, verringert sich ebenfalls der Dosis-build-up-Faktor (Abb. 2).

Als meßtechnisch kritische Größe muß aber offenbar der Öffnungswinkel des vom Meßgerät aufgenommenen Strahlenbündels betrachtet werden, und deshalb der Einfluß des Abstandes Meßgerät—Schutzwand auf den Wert des Dosis-build-up-Faktors untersucht werden. Abb. 3 zeigt die Abhängigkeit des Dosis-build-up-Faktors von eben diesem Abstand. Es ist ersichtlich, daß eine Variation des Abstandes Meßgerät—Absorber im Bereich von 0 bis 20 cm keinen Einfluß auf den Wert des build-up-Faktors aufweist und der Wert von  $B^+$  erreicht wird. Bei weiterer Abstandsvergrößerung sinkt der Wert des build-up-Faktors rasch ab und erreicht bei etwa 30 cm den Wert 1. Das heißt, für diese Entfernung gilt unter den gewählten Bedingungen das exponentielle Schwächungsgesetz.

Aus den in Abb. 3 dargestellten Messungen ergibt sich, daß das benutzte Meßinstrument eine gewisse maximale Größe nicht überschreiten darf, da anderenfalls ein wesentlicher Bruchteil des Instrumentes zu wenig Strahlung registriert und so einen kleineren build-up-Faktor vortäuschen würde. Die strahlungsempfindlichen Teile des Instrumentes dürfen nicht weiter als 2 bis 3 cm vom Absorber entfernt sein. Die Bedingung war für den verwendeten  $\text{NaJ(Tl)}$ -Kristall v.  $3,7 \text{ cm} \times 2,5 \text{ cm}$  Dicke erfüllt. Ferner zeigt sich, daß geringfügige Unebenheiten der Wand, wie sie z. B. bei Betonmörtel unvermeidlich sind, keinen Einfluß auf das Meßergebnis haben.

Zur Messung des Dosis-build-up-Faktors nach der geschilderten Methode ist die Kenntnis der Größe des Schwächungskoeffizienten erforderlich. Dadurch gehen geringe Variationen im Werte des  $\mu$  exponentiell in den Fehler für  $B_{\infty}$  ein und führen zu einer relativ großen Ungenauigkeit des Dosis-build-up-Faktors mit etwa  $\pm 10$  bis  $20\%$ . Dies entspricht auch den Fehlerangaben, welche in der Literatur für  $B^+$  gemacht werden [9], [11]. Um die Genauigkeit der Messungen heraufzusetzen, wurde eine Meßanordnung nach Abb. 4 aufgebaut, die eine Bestimmung des Dosis-build-up-Faktors  $B_{\infty}$  unabhängig vom Schwächungskoeffizienten gestattet.



Aus Abb. 3 ist zu entnehmen, daß sich eine Wand von 2500 cm<sup>2</sup> Fläche in einer Entfernung von mehr als 3 m vom Meßinstrument unter den angegebenen Versuchsbedingungen praktisch so verhält, als sei der Dosis-build-up-Faktor gleich 1 (Gültigkeit des exponentiellen Schwächungsgesetzes). Deshalb befindet sich der Absorber *B* — übrigens aus dem gleichen Material hergestellt wie der Absorber *A* — in einem Abstand von 3 m vom Strahlungsmeßgerät und dieses ist gestrichelt daher nur den Dosis-build-up-Faktor des Absorbers *A*. Zusätzlich ist noch gegenüber den Bedingungen in Abb. 3 die Größe der Oberfläche, von welcher Streustrahlung aus der Wand *B* auf das Meßinstrument fallen könnte, durch eine Blende von 2500 cm<sup>2</sup> verringert worden. Eine kurze Rechnung möge den Gang der Messung erläutern.

Es sei die Dosisleistung, welche man ohne die Absorber *A* und *B* mißt, gleich  $D_0$ . Bringt man jetzt beide Wände mit den Schichtdicken *a* und *b* direkt vor die Strahlenquelle, so erhält man, wo in Abb. 4 nur der Absorber *B* eingezeichnet ist), die Dosisleistung

$$D_0 = D_0' e^{-\mu(a+b)}. \quad (5)$$

Wird die Wand *A* fortgenommen, *B* dort belassen, so zeigt das Meßinstrument die Dosisleistung  $D_0'$  an:

$$D_0' = D_0' e^{-\mu b}. \quad (6)$$

Bringt man nun auch *A* wieder in den Strahlengang, aber wie in Abb. 4 gezeigt, unmittelbar vor das Meßinstrument, dann ergibt sich die Dosisleistung

$$D = D_0' e^{-\mu a} B_{\infty}(a), \quad (7)$$

h. die Dosisleistung nach dem Schwächungsgesetz, multipliziert mit dem Dosis-build-up-Faktor  $B(a)$  des Absorbers *A* der Dicke *a*. Aus den Gln. (6) und (7) folgt

$$D = D_0' e^{-\mu \cdot (a+b)} B_{\infty}(a), \quad (8)$$

und aus (5) und (8) ergibt sich durch Division

$$B_{\infty}(a) = D/D_0. \quad (9)$$

Gl. (9) hat die gleiche Form, wie die vorher zur Berechnung von  $B_{\infty}$  benutzte Gl. (1). Doch sind wesentliche Unterschiede zu vermerken: In (1) wurde  $D_0$  mit Hilfe von  $\mu$  berechnet; dabei änderte sich  $D_0$  mit zunehmender Schichtdicke um viele Zehnerpotenzen. In Gl. (9) wird  $D_0$  gemessen und ist für die gesamte Meßreihe konstant. Verändert werden nur *a* und *b*, während ihre Summe  $a+b=c$  vorher festgelegt wird; *c* muß gleich der maximalen Schichtdicke sein, welche gemessen werden soll. Dann läßt sich der Dosis-build-up-Faktor im Bereich von  $B_{\infty}(0)$  bis  $B_{\infty}(c)$  durch Variation des Verhältnisses *a*:*b* messen. Ferner änderte sich in (1) *D* nahezu in gleichem Maße wie  $D_0$ . Das Meßgerät müßte also in diesem Fall den Dosisleistungsbereich von vielen Zehnerpotenzen umfassen. In (9) dagegen unterscheidet sich *D* vom konstanten  $D_0$  nur um den Betrag des build-up-Faktors, also allenfalls um eine bis zwei Zehnerpotenzen, die meßtechnisch leicht mit großer Genauigkeit erfaßt werden können. Schließlich geht über die Berechnung des Dosis-build-up-Faktors nach Gl. (1) der Fehler des  $\mu$  entscheidend ein, während bei einer Messung nach Abb. 4 der Schwächungskoeffizient  $\mu$  überhaupt nicht benötigt wird.

Die mit diesem Verfahren für Pb erhaltenen Meßwerte für  $\gamma$ -Strahlungen von 0,66 und 1,25 MeV stimmen gut mit den Werten für  $B^+$  aus den Literaturangaben überein [9]. Nun ist jedoch für die Mehrzahl der gebräuchlichen Strahlenschutzstoffe die effektive Ordnungszahl niedriger als die des Bleis. Da mit abnehmender Ordnungszahl der Anteil der Compton-Streuung an der Schwächung zunimmt, ist mit der Möglichkeit zu rechnen, daß sich größere Unterschiede zwischen den build-up-Faktoren für niedertomiges Material bei endlichem und unendlichem Absorber finden würden. Ein solcher Effekt konnte für einen Absorber aus Barytbleton der Dichte

3,2 g cm<sup>-3</sup> und  $\gamma$ -Strahlung von 1,25 MeV bzw. Röntgenstrahlung von 300 kV nicht nachgewiesen werden; für einen Absorber aus H<sub>2</sub>O ergaben sich jedoch Unterschiede bis zu 20% (bei vier Relaxationslängen Schichtdicke) und mehr.

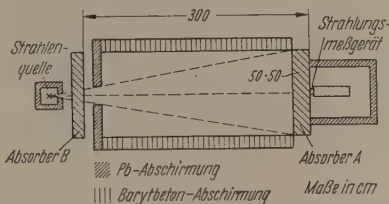


Abb. 4. Meßanordnung zur Bestimmung des Dosis-build-up-Faktors, bei der eine Kenntnis des Schwächungskoeffizienten  $\mu$  nicht erforderlich ist

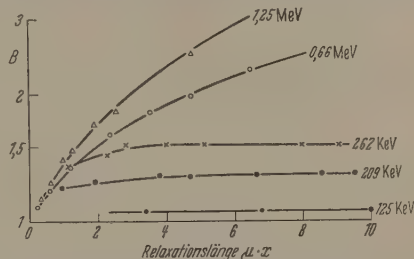


Abb. 5. Dosis-build-up-Faktoren *B* für Pb als Funktion der Relaxationslänge für verschiedene Strahlungen. Punktförmiger Strahler

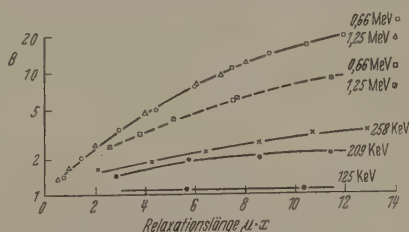


Abb. 6. Dosis-build-up-Faktoren *B* für Barytbleton als Funktion der Relaxationslänge für verschiedene Strahlungen. Ausgezogene Kurven Dichte 3,2 g cm<sup>-3</sup>, gestrichelte Kurve  $D = 3,9$  g cm<sup>-3</sup>. Die Kurven für 0,66 und 1,25 MeV fallen jeweils zusammen. Punktförmiger Strahler

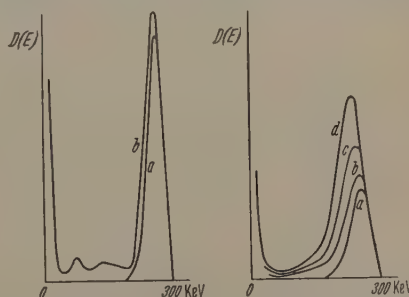


Abb. 7. Dosisleistungsspektrum einer 300 kV-Röntgenstrahlung. Links nach Durchgang durch 5 mm Pb-Absorber. Kurve *a* entspricht der ungestreuten Strahlung, *b* der ungestreuten plus gestreuten, gemessen bei einer Feldgröße von 2500 cm<sup>2</sup>. Rechts sind *b*, *c* und *d* die Spektren der Gesamtstrahlung (ungestreute plus gestreute Strahlung) nach Durchgang durch 30, 90 bzw. 180 mm Barytbleton; jedes dieser Spektren ist bezogen auf die gleiche Dosisleistung der ungestreuten Strahlung, d.h. bezogen auf die gleiche Kurve *a*. Dabei ist zu bemerken, daß die Vorfilterung der Röntgenstrahlung so stark war, daß sich das Spektrum der ungestreuten Strahlung (Kurve *a*) nach Durchgang durch Schichten von 30 bis 180 mm Barytbleton nicht mehr meßbar in seiner Form änderte

Aus diesen Messungen ist lediglich zu schließen, daß bei niedertomigem Material  $B_{\infty}$  beträchtlich größer sein kann als das gemessene *B*. Es kann aber ebenso gut der Fall vorliegen, daß sich *B* und  $B_{\infty}$  nicht wesentlich unterscheiden, sondern nur infolge erhöhter Rückstreuung  $B^+$  merklich größer als *B* und  $B_{\infty}$  ist.

Aus den Untersuchungsergebnissen folgt also, daß für Stoffe hoher und mittlerer effektiver Ordnungszahlen in relativ einfacher Weise zuverlässige Werte

gilt insbesondere für Röntgenlicht —, so sind die für die Messungen durch entsprechende Vorfilterung homogen zu machen. Ist aber die Strahlung monochromatisch oder genüge chromatisch, so sind die Gln. bis (9) streng gültig (natürlich wieder mit der schon oben erwähnten Ausnahme für die wogender Vorwärtsstreuung und das Meßinstrument restriert von der vom Absorber (Abb. 4, ohne Absorber A) ausgehenden Streustrahlung in einen gegenüber der ungestreuten Strahlung um mehrere Größenordnungen kleiner Bruchteil. Es läßt sich zeigen, daß für die untersuchten Strahlenqualitäten das Spektrum der auf das Meßinstrument treffenden Strahlung in seiner Form unabhängig von der Dicke von B ist (z. B. Abb. 7). Dies gilt aber auch ebenso gut für das Spektrum der auf dem Absorber A auftreffenden Strahlung: Über ist die vom Absorber B gestreute Strahlung um Größenordnungen kleiner als die ungestreute Strahlung. Es kommt nicht auf das Spektrum von B verlassen der Strahlung sondern auf das Spektrum auf A auftreffenden Strahlung. So lange wie letzteres in seiner Form unabhängig ist von der Dicke des Absorbers B, läßt sich ein build-up-Faktor abhängig von der Energiedosis dieser Strahlung messen.

Die mit dem beschriebenen Verfahren gemessenen Dosis-build-up-Faktoren für punktförmigen Strahler sind in Tabelle 1 für Pb und verschiedene Strahlungen zusammengestellt. In Abb. 5 sind die Werte in Diagrammen wieder gegeben. Ähnliche Messungen des Dosis-build-up-Faktors wurden auch an Barytbeton vorgenommen, die Ergebnisse sind in Tabelle 2 aufgeführt. Abb. 6 zeigt die Abhängigkeit des  $B_{\infty}$  von der Relaxationslänge mit der Strahlenqualität als Parameter. Bei beiden Betonarten fallen jeweils die Kurven für 0,66 und 1,25 MeV zusammen.

Die für die Werte von 150, 250 und 300 kV verwendete Röntgenstrahlung war so stark vorgefiltert, daß sich ihr Spektrum bei weiterer Filterung nicht mehr änderte. Die Halbwertsbreite der Spektren der Maxima bei 125, 209 bzw. 262 (258) kV lag

Tabelle 1. Dosis-build-up-Faktoren für Pb. Punktförmiger Strahler

Strahlung	$\mu$ cm <sup>-1</sup>	$x$ mm	$\mu x$	$B_{\infty}$	$x$ mm	$\mu x$	$B_{\infty}$	$x$ mm	$\mu x$	$B_{\infty}$
150 kV R <sub>0</sub> $E_{\max} \approx 125$ kV	34	1	3,4	<1,1	2	6,8	<1,1	4	13,6	<1,1
		5	17	<1,1						
250 kV R <sub>0</sub> $E_{\max} \approx 209$ kV	9,54	1	0,95	1,2	2	1,91	1,23	4	3,82	1,27
		5	4,77	1,27	7	6,68	1,28	9	8,59	1,28
		10	9,54	1,29						
300 kV R <sub>0</sub> $E_{\max} \approx 262$ kV	5,38	2	1,14	1,35	4	2,27	1,43	5	2,84	1,51
		7	3,98	1,51	9	5,12	1,51	14	7,95	1,52
		16	9,1	1,52						
0,66 MeV Cs <sup>137</sup>	1,178	2	0,24	1,08	5	0,59	1,18	10	1,18	1,34
		20	2,36	1,60	30	3,54	1,80	40	4,72	1,98
		55	6,48	2,28						
1,25 MeV Co <sup>60</sup> (1,17 + 1,33)	0,631	5	0,316	1,13	10	0,63	1,23	15	0,95	1,40
		20	1,26	1,47	30	1,89	1,69	40	2,52	1,81
		75	4,73	2,50						

Tabelle 2. Dosis-build-up-Faktoren für Barytbeton. Punktförmiger Strahler<sup>1</sup>

Strahlung	$\mu$ cm <sup>-1</sup>	$x$ mm	$\mu x$	$B_{\infty}$	$x$ mm	$\mu x$	$B_{\infty}$	$x$ mm	$\mu x$	$B_{\infty}$
150 kV R <sub>0</sub> $E_{\max} \approx 125$ kV	$\approx 1,9$	30	5,7	<1,1	60	11,4	<1,1			
250 kV R <sub>0</sub> $E_{\max} \approx 209$ kV	$\approx 0,96$	30	2,88	1,42	60	5,77	1,94	90	8,65	1,99
		120	11,5	2,19						
300 kV R <sub>0</sub> $E_{\max} \approx 258$ kV	$\approx 0,72$	30	2,16	1,64	60	4,32	1,71	90	6,48	2,25
		120	8,64	2,62	150	10,8	3,12	180	12,96	3,27
0,66 MeV Cs <sup>137</sup>	0,25	30	0,75	1,40	60	1,5	2,00	120	3,05	3,36
		180	4,55	4,90	240	6,05	7,50	300	7,60	10,5
		360	9,1	13,5	420	10,6	16	480	12,1	19
1,25 MeV Co <sup>60</sup> (1,17 + 1,33)	0,169	30	0,507	1,35	60	1,01	1,65	120	2,03	2,51
		240	4,06	4,57	360	6,09	7,6	420	7,1	9,2
		480	8,12	11,9						

Dichte 3,2 g · cm<sup>-3</sup> \*

0,66 MeV	0,275	140	3,85	3,10	280	7,7	5,8	420	11,55	8,7
1,25 MeV	0,186	140	2,60	2,50	280	5,2	4,0	420	7,8	5,9

Dichte 3,9 g · cm<sup>-3</sup> \*\*

<sup>1</sup> Beide Barytbetonarten von der Firma Vereinigte Werke Dr. Rudolf Alberti und Co., Bad Lauterberg/Harz.  
\* Firmenbezeichnung R<sub>0</sub> 6.  
\*\* Firmenbezeichnung Gabaryt.

für  $B_{\infty}$  ermittelt werden können. Allerdings ist die Methode nur bei praktisch monochromatischer Primärstrahlung anwendbar, da anderenfalls nicht zwischen den einzelnen Strahlungen unterschieden werden kann. Liegen inhomogene Strahlungen vor — das



entspricht gerade dem Auflösungsvermögen des Szintillationszählers, so daß aus den Spektren keine weiteren Angaben über die Zusammensetzung der Strahlung entnommen werden können (Abb. 7).

Die Genauigkeit der gemessenen Dosis-build-up-Faktoren  $B_\infty$  beträgt  $\pm 5\%$ . Dieser Fehler setzt sich zusammen aus dem Fehler, welcher durch die Dosisleistungsmessung entsteht, Dichte- und Homogenitätsschwankungen des verwendeten Materials, Abweichungen, die auf der Verwendung eines endlichen bestrahlten Feldes beruhen und den Fehlern, welche durch die Impulsstatistik und die Schwankungen des elektronischen Teils der Apparatur hervorgerufen werden.

### Zusammenfassung

Für die Berechnung einer Schutzwand für Strahlenschutz Zwecke ist wegen der Ausdehnung der Wand und der damit verbundenen Erhöhung der Dosisleistung hinter der Schutzwand durch Streustrahlung nicht nur der Schwächungskoeffizient  $\mu$  erforderlich, sondern zusätzlich der Dosis-build-up-Faktor  $B$ . Dabei sind drei build-up-Faktoren mit verschiedenem Inhalt zu unterscheiden:

- a) Der Dosis-build-up-Faktor wird berechnet für eine Wand beliebiger Größe. Dieser build-up-Faktor kann keine Allgemeingültigkeit beanspruchen, er bezieht sich nur auf eine ganz spezielle Meßanordnung.
- b) Der Dosis-build-up-Faktor wird berechnet für ein unendlich ausgedehntes Medium, in dem sich Strahler und Absorber befinden ( $B^+$ ). Werte dieser Art sind in der Literatur veröffentlicht, sie sind theoretisch berechnet und teilweise gemessen worden, erreichen aber nur eine Genauigkeit von  $\pm 10$  bis  $20\%$ .

c) Der Dosis-build-up-Faktor wird berechnet für eine Wand unendlicher Größe. Allein dieser Wert  $B_\infty$  ist für den Strahlenschutz sinnvoll, da durch ihn die maximal hinter einer Schutzwand erreichte Dosisleistung berechnet werden kann.

Es wird eine Meßmethode untersucht und beschrieben, die gestattet, dieses  $B_\infty$  mit großer Genauigkeit ( $\pm 5\%$ ) an relativ kleinen Absorberstücken zu messen (Absorber der Größe  $50 \times 50 \text{ cm}^2$ ). Diese Meßanordnung ist geeignet für Strahlenschutzmaterialien hoher und mittlerer Ordnungszahlen. Ihre Meßergebnisse stimmen in dem untersuchten Bereich mit den  $B^+$ -Werten der Literatur überein. Für niederatomiges Material treten Abweichungen auf. Für verschiedene Materialien und Strahlenqualitäten werden Werte für  $B_\infty$  angegeben.

**Literatur:** [1] BERGER, M. J., and J. DOGGETT: J. Res. Nat. Bur. Stand. **56**, 89 (1956). — [2] BERGER, M. J., and J. DOGGETT: J. Res. Nat. Bur. Stand. **56**, 355 (1956). — [3] DILLA, M. A. VAN, and G. J. HINE: Nucleonics **10** (7), 54 (1952). — [4] DIXON, W. R.: Phys. Rev. **85**, 498 (1952). — [5] FANO, U.: Nucleonics **11** (8), 8 (1953). — [6] FANO, U.: Nucleonics **11** (9), 55 (1953). — [7] GARRETT, C., and G. N. WHYTE: Phys. Rev. **95**, 889 (1954). — [8] GLUBRECHT, H.: Atompraxis **2**, 349 (1956). — [9] GOLDSTEIN, H.: Fundamental Aspects of Reactor Shielding. Reading, Mass. 1959. — [10] GOLDSTEIN, H., R. ARONSON: NYO-3079, NDA 15C-1. 1953. — [11] GOLDSTEIN, H., and J. E. WILKINS jr.: NYO-3075. 1954. — [12] GOLDSTEIN, H., J. E. WILKINS jr. and L. V. SPENCER: Phys. Rev. **89**, 1150 (1953). — [13] PRICE, B. T., C. C. HORTON and K. T. SPINNEY: Radiation Shielding. New York 1957. — [14] WHITE, G. R.: Phys. Rev. **80**, 154 (1950). — [15] WYCKOFF, H. O., R. J. KENNEDY and W. R. BRADFORD: Nucleonics **3** (5), 62 (1948). — [16] WYCKOFF, H. O., R. J. KENNEDY and W. R. BRADFORD: J. Res. Nat. Bur. Stand. **41**, 223 (1948).

Dr. HEINRICH GEORG EBERT,  
Göttingen, Institut für Medizinische Physik und Biophysik,  
Gosslerstraße 10

## Über den Wechselstromwiderstand eines elektrischen Bogens

Von WOLFGANG FRIE

Mit 2 Textabbildungen

(Eingegangen am 16. November 1960)

### Einleitung

Bei einer sprunghaften Änderung der Stromstärke eines elektrischen Bogens stellt sich der neue veränderte stationäre Zustand mit einer gewissen Verzögerung ein, die durch eine oder mehrere mittlere Zeitkonstanten beschrieben werden kann. Bei kontinuierlichen zeitlichen Änderungen ist das „Nachhinken“ des Leitwertes durch das Produkt aus der Änderungsgeschwindigkeit und der Zeitkonstanten gegeben. Zur Untersuchung dieser „thermischen Trägheit“ bieten sich drei Methoden an:

1. Man schaltet die Spannung ab und mißt das zeitliche Abklingen des Leitwertes durch die mittlere Zeitkonstante  $\Theta$ .

2. Man gibt eine Stromstufe auf den Bogen und mißt die dazu gehörende mittlere Zeitkonstante  $\Theta_{\text{Stufe}}$ .

3. Man untersucht den Wechselstromwiderstand des Bogens.

Zu den Punkten 1. und 2. sei auf die Arbeit von F. FRIND [1] verwiesen. Den theoretischen Über-

legungen ist dabei die Theorie des wandstabilisierten Bogens nach H. MAECKER [2] zugrunde gelegt. Für den Zusammenhang zwischen  $\Theta_{\text{Stufe}}$  und  $\Theta$  wurde die folgende Beziehung hergeleitet:

$$\Theta_{\text{Stufe}} = \Theta \frac{1}{2} \left( 1 - \frac{d \log \bar{E}}{d \log \bar{I}} \right). \quad (1)$$

$\bar{I}$  ist die Stromstärke,  $\bar{E}$  die Feldstärke im Gleichgewicht.

Das Verhalten des Bogens einer überlagerten Wechselspannung gegenüber kann man durch einen komplexen Widerstandsoperator pro Einheit der Bogenlänge beschreiben:

$$\mathfrak{R}_\sim = \frac{E_\sim}{I_\sim}. \quad (2a)$$

$E_\sim$  ist die Amplitude der Wechselfeldstärke,  $I_\sim$  die des Wechselstromes.

Bei kleinen Frequenzen ( $\omega \Theta \ll 1$ ) kann der Bogen jeder zeitlichen Änderung folgen. Man durchläuft

Gleichgewichtszustände längs der statischen Strom-Spannungs-Kennlinie:

$$(\Re_{\sim})_{\omega \rightarrow 0} = \frac{d\bar{E}}{dI} \quad (2b)$$

Bei sehr großen Frequenzen ( $\omega\Theta \gg 1$ ) jedoch ist der Bogen thermisch träge. Der Leitwert bleibt konstant:

$$(\Re_{\sim})_{\omega \rightarrow \infty} = \frac{\bar{E}}{I} \quad (2c)$$

O. MAYR [3] und W. WEIZEL/R. ROMPE [4] haben den Wechselstromwiderstand durch lineare Schaltelemente dargestellt (Abb. 1). WEIZEL und ROMPE [4] haben aber am Kanalmodell gezeigt, daß der Widerstand bei Berücksichtigung der Wärmeableitung nicht mehr diese einfache Gestalt hat, sondern eine kompliziertere Frequenzabhängigkeit zeigt, die durch Hankel-Funktionen mit komplexem Argument beschrieben

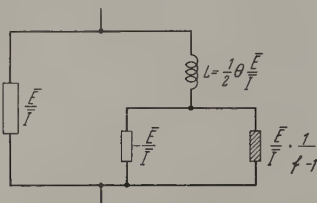


Abb. 1. Wechselstromwiderstand eines Bogens. Bei dem von MAYR und WEIZEL/ROMPE angegebenen Ersatzschaltbild gilt für das schraffierte Schaltelement  $d\bar{E}/dI$

wird. Für kleinere Frequenzen wird diese Darstellung jedoch unbrauchbar, weil sie den Grenzfall (2b) nicht enthält. Es soll deshalb im Anschluß an die Theorie des wandstabilisierten Bogens nach H. MÄCKER [2] eine verbesserte Theorie des Wechselstromwiderstandes vorgeschlagen werden.

### 1. Berechnung des Wechselstromwiderstandes für kleine Ströme

In die Elenbaas-Hellersche Energiebilanz-Gleichung

$$\sigma E^2 + \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} r \left( \kappa \frac{\partial T}{\partial r} \right) = \varrho c_p \frac{\partial T}{\partial t} \quad (3)$$

$\sigma$  = elektrische Leitfähigkeit

$\kappa$  = Wärmeleitfähigkeit

$\varrho c_p$  = spezifische Wärme pro Volumeneinheit

wird nach G. SCHMITZ [5] das Wärmestrompotential (siehe auch [1], [2])

$$S(T) \stackrel{T}{Df} \int_0^T dT \kappa(T) \quad (4)$$

eingeführt. Die  $\sigma(S)$ -Kurve wird, ebenfalls nach G. SCHMITZ [6], durch Geraden ersetzt (siehe [1], [2]):

$$\left. \begin{aligned} \sigma &= B(S - S_1) & \text{für } S \geq S_1 \\ \sigma &= 0 & \text{für } S \leq S_1 \end{aligned} \right\} \quad (5)$$

Um die Ergebnisse nicht zu sehr komplizieren, sollen  $B$ ,  $S_1$  und  $\kappa/\varrho c_p$  als Konstanten behandelt werden. Die Rechnung (siehe [1]) ergibt:

$$\Theta = \frac{\varrho c_p}{\kappa B \bar{E}^2} \quad (6a)$$

Kürzt man noch ab:

$$x \stackrel{Df}{=} \sqrt{B \bar{E}} r, \quad (6b)$$

dann lautet die Energiebilanzgleichung:

$$\frac{1}{x} \frac{\partial}{\partial x} x \frac{\partial S}{\partial x} + \frac{E^2}{\bar{E}^2} (S - S_1) = \Theta \frac{\partial S}{\partial t} \quad (7a)$$

und in der integrierten Form:

$$E \cdot I = 2\pi \left\{ \Theta \int_0^{x^*} dx x \frac{\partial S}{\partial t} - x^* \left( \frac{\partial S}{\partial x} \right)_{x^*} \right\} \quad (7b)$$

mit den Nebenbedingungen:

$$\left. \begin{aligned} S(x^*) &= S_1; \quad S(x_R) = 0; \quad \left( \frac{\partial S}{\partial x} \right)_{x^*} = \text{stetig} \\ x_R &= \sqrt{B \bar{E}} R; \quad R = \text{Rohrradius} \\ x^* &= \sqrt{B \bar{E}} r_0; \quad r_0 = \text{Radius des leitfähigen} \\ &\quad \text{Bereiches.} \end{aligned} \right\} \quad (7c)$$

Es sei nun die ungestörte Lösung nach [2] als bekannt vorausgesetzt und die Störung angesetzt in der Form:

$$\left. \begin{aligned} E &= \bar{E} + E_{\sim} e^{i\omega t} + \dots \\ I &= \bar{I} + I_{\sim} e^{i\omega t} + \dots \\ x^* &= x_0 + x_{\sim} \frac{E_{\sim}}{\bar{E}} e^{i\omega t} + \dots \\ r_0 &= \bar{r}_0 + (r_0)_{\sim} e^{i\omega t} + \dots \end{aligned} \right\} \quad (8)$$

$x_0$  = erste Nullstelle der Bessel-Funktion  $I_0(x)$ .

In diesem Ansatz ist neben der Oszillation von Strom Spannung und Wärmestrompotential auch die des Leitfähigkeitsradius  $r_0$  berücksichtigt. Man bekommt aus (7a):

$$\left. \begin{aligned} S &= S_1 + (S_0 - S_1) I_0(x) + (S_0 - S_1) \frac{E_{\sim}}{\bar{E}} e^{i\omega t} \times \\ &\times \left\{ \frac{2}{i\omega \Theta} I_0(x) + c_1 I_0(\sqrt{1 - i\omega \Theta} x) \right\} + \dots \end{aligned} \right\} \quad (9a)$$

für  $S \geq S_1$

und:

$$\left. \begin{aligned} S &= S_1 - (S_0 - S_1) x_0 I_1(x_0) \log \frac{x}{x_0} + \\ &+ (S_0 - S_1) \frac{E_{\sim}}{\bar{E}} e^{i\omega t} \times \\ &\times \{ c_2 I_0(\sqrt{1 - i\omega \Theta} x) + c_3 H_0^{(2)}(\sqrt{1 - i\omega \Theta} x) \} + \dots \end{aligned} \right\} \quad (9b)$$

für  $S \leq S_1$

$S_0$  ist der Achsenwert des Wärmestrompotentials  $S$  im ungestörten Falle. Aus den Nebenbedingungen (7c) ergeben sich die Beziehungen:

$$\frac{S_1}{S_0 - S_1} = x_0 I_1(x_0) \log \frac{x_R}{x_0} \quad (10a)$$

und:

$$\left. \begin{aligned} c_1 I_0(z_1) &= I_1(x_0) x_{\sim}, \\ c_2 I_0(z_0) + c_3 H_0^{(2)}(z_0) &= I_1(x_0) x_{\sim}, \\ c_2 I_0(z_R) + c_3 H_0^{(2)}(z_R) &= 0, \\ c_2 z_0 I_1(z_0) + c_3 z_0 H_1^{(2)}(z_0) &= \frac{2}{i\omega \Theta} I_1(x_0) x_0 + \\ &+ c_1 z_1 I_1(z_1). \end{aligned} \right\} \quad (10b)$$



bei sind die folgenden Abkürzungen benutzt:

$$\left. \begin{aligned} z_1 \overline{Df} \sqrt{1 - i\omega\Theta} x_0; \quad z_0 \overline{Df} \sqrt{-i\omega\Theta} x_0; \\ z_R \overline{Df} \sqrt{-i\omega\Theta} x_R. \end{aligned} \right\} \quad (10c)$$

Die integrierte Energiebilanz liefert dann die beiden Gleichungen:

$$\bar{E} \cdot \bar{I} = 2\pi(S_0 - S_1) x_0 I_1(x_0) \quad (11a)$$

und:

$$\frac{\bar{E}}{\bar{I}} \frac{1}{\Re_{\sim}} = 1 + \frac{2}{i\omega\Theta} + \frac{c_1}{\sqrt{1 - i\omega\Theta}} \frac{I_1(z_1)}{I_1(x_0)} \quad (11b)$$

Der nach Berechnung von  $c_1$  aus dem Gleichungssystem (10b):

$$\frac{\bar{E}}{\bar{I}} \frac{1}{\Re_{\sim}} = 1 + \frac{1}{\frac{i\omega\Theta}{2} + \frac{1}{-2 + f(\omega\Theta; x_R)}} \quad (11c)$$

ist:

$$\left. \begin{aligned} f(\omega\Theta; x_R) = 2 \frac{z_1}{z_0} \frac{I_0(z_1)}{I_1(z_1)} \frac{H_1^{(2)}(z_0)}{H_0^{(2)}(z_0)} \times \\ \times \left\{ 1 + \frac{I_0(z_0)}{H_0^{(2)}(z_0)} - \frac{I_1(z_0)}{H_1^{(2)}(z_0)} \right\} \\ \times \left\{ 1 + \frac{I_0(z_R)}{H_0^{(2)}(z_R)} - \frac{I_1(z_0)}{H_1^{(2)}(z_0)} \right\} \end{aligned} \right\} \quad (11d)$$

Für die Oszillationsamplitude des Leitfähigkeitsradius  $r_0$  gilt:

$$\frac{(r_0)_{\sim}}{\bar{r}_0} = \frac{\frac{E_{\sim}}{\bar{E}}}{\frac{i\omega\Theta}{2} \frac{z_1 I_1(z_1)}{I_0(z_1)} \left\{ 2 \frac{z_0^2}{z_1^2} f(\omega\Theta; x_R) - 1 \right\}} \quad (11e)$$

Aus (10a) und (11a) beweist man durch Konstanthalten von  $B$  und  $S_1$ :

$$\frac{d \log \bar{E} \cdot \bar{I}}{d \log \bar{E}} = - \frac{1}{\log \frac{x_R}{x_0}} \quad (12)$$

Damit ist:

$$\left. \begin{aligned} \lim_{\omega\Theta \rightarrow 0} f(\omega\Theta; x_R) &= \frac{d \log \bar{E} \cdot \bar{I}}{d \log \bar{E}}; \quad \lim_{\omega\Theta \rightarrow 0} \Re_{\sim} = \frac{d \bar{E}}{d \bar{I}}; \\ \lim_{\omega\Theta \rightarrow 0} \frac{(r_0)_{\sim}}{\bar{r}_0} &= - \frac{E_{\sim}}{\bar{E}}; \\ \lim_{\omega\Theta \rightarrow \infty} f(\omega\Theta; x_R) &= -2; \quad \lim_{\omega\Theta \rightarrow \infty} \Re_{\sim} = \frac{\bar{E}}{\bar{I}}; \\ \lim_{\omega\Theta \rightarrow \infty} \frac{(r_0)_{\sim}}{\bar{r}_0} &= - \frac{E_{\sim}}{\bar{E}} (\omega\Theta)^{-\frac{1}{2}} \frac{1}{x_0} e^{i\pi/4}. \end{aligned} \right\} \quad (13)$$

Die hier berechnete Formel für den Wechselstromwiderstand entspricht dem in Abb. 1 dargestellten Ersatzschaltbild. Ersetzt man  $f(\omega\Theta; x_R)$  durch  $f(0; x_R)$ , ann geht sie in die von MAYR und WEIZEL/ROMPE egebene Form über. Sie gibt das Verhalten des Wechselstromwiderstandes in den beiden Grenzfällen richtig wieder. Auch die Formel für den Leitfähigkeitsradius  $r_0$  ist einleuchtend, denn beim Durchlaufen von Gleichgewichtszuständen bei sehr kleinen Frequenzen muß wegen

$$\sqrt{BE} r_0 = x_0$$

gelten:

$$\bar{E} \cdot (r_0)_{\sim} + E_{\sim} \cdot \bar{r}_0 = 0. \quad (14)$$

## 2. Berechnung des Wechselstromwiderstandes für große Ströme

Ist  $S_1$  negativ, dann geht der leitfähige Teil bis in den Rand des Entladungsrohres, der Außenbereich

( $S < S_1$ ) fällt fort ( $x^* = x_R$ ), und man bekommt einfach die Lösung (9a) mit den Nebenbedingungen:

$$S_1 + (S_0 - S_1) I_0(x_R) = 0, \quad (15a)$$

$$\frac{2}{i\omega\Theta} I_0(x_R) + c_1 I_0(z_2) = 0, \quad (15b)$$

$$\bar{E} \cdot \bar{I} = 2\pi(S_0 - S_1) x_R I_1(x_R) \quad (15c)$$

und:

$$\frac{\bar{E}}{\bar{I}} \frac{1}{\Re_{\sim}} = 1 + \frac{2}{i\omega\Theta} + \frac{2i}{\omega\Theta} \frac{x_R}{z_2} \frac{I_1(z_2)}{I_0(z_2)} \frac{I_0(x_R)}{I_1(x_R)} \quad (15d)$$

mit

$$z_2 \overline{Df} \sqrt{1 - i\omega\Theta} x_R. \quad (15e)$$

Hier folgt aus (15a) und (15c):

$$\frac{d \log \bar{E} \cdot \bar{I}}{d \log \bar{E}} = x_R \left\{ \frac{I_1(x_R)}{I_0(x_R)} + \frac{I_0(x_R)}{I_1(x_R)} \right\}. \quad (16a)$$

Damit ist wieder:

$$\lim_{\omega \rightarrow 0} \Re_{\sim} = \frac{d \bar{E}}{d \bar{I}}; \quad \lim_{\omega \rightarrow \infty} \Re_{\sim} = \frac{\bar{E}}{\bar{I}}. \quad (16b)$$

## 3. Diskussion der Ergebnisse

In Abb. 2 sind die Ortskurven des Wechselstromwiderstandes für die Arbeitspunkte

$$\frac{d \log \bar{E}}{d \log \bar{I}} = -1; \quad -0,5; \quad -0,2; \quad 0; \quad +0,2; \quad +0,4;$$

sowie die Kurven  $\omega\Theta = \text{const}$  für

$$\omega\Theta = 0,1; \quad 0,25; \quad 0,5; \quad 1; \quad 2; \quad 4$$

aufgetragen, wie sie sich bei Auswertung der berechneten Formeln ergeben. Die beiden Teillösungen für den fallenden (11) und für den steigenden (15d) Teil der Strom-Spannungs-Kennlinie schließen sich für  $x_R = x_0$ , d.h.  $d \log \bar{E} / d \log \bar{I} = 0$ , für jedes  $\omega\Theta$  differenzierbar aneinander an. Die Ortskurve des Widerstandsoperators weicht im Hyperbelast der Kennlinie stark von der Kreisform ab, bei  $d \log \bar{E} / d \log \bar{I} = 0$

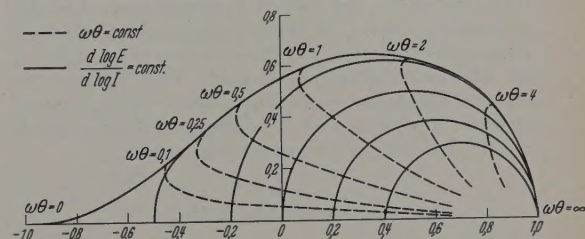


Abb. 2. Der relative Wechselstromwiderstand  $R_{\sim}/R_{\sim}$  als Funktion von  $\omega\Theta$  und  $d \log E / d \log I$

stimmt sie mit der aus Abb. 1 überein, bei größeren Strömen ist sie zwar auch noch näherungsweise ein Kreisbogen, jedoch schneiden die Kurven  $\omega\Theta = \text{const}$  nicht mehr orthogonal, so daß auch dort Abweichungen auftreten.

Die Berechnung des Wechselstromwiderstandes ist hier für den wandstabilisierten Bogen durchgeführt worden. Setzt man jedoch voraus, daß bei einem freibrennenden Bogen die Konvektion die Rolle der kühlenden Wand übernimmt, dann sind die Ergebnisse auch in diesem Falle sicherlich näherungsweise richtig.



*Zusammenfassung*

Ausgehend von der Theorie des wandstabilisierten Bogens nach H. MAECKER wird eine Formel für den komplexen Widerstandsoperator hergeleitet. Sie schließt für jeden Punkt der Strom-Spannungs-Kennlinie die Grenzfälle sehr großer und sehr kleiner Frequenzen ein. Die Ergebnisse sind in einem Ortskurven-Diagramm zusammengestellt.

Diese Arbeit wurde durch Untersuchungen von Herrn Dr. G. FRIND über das Abklingen von Lichtbögen angeregt. Herrn cand. math. GUTGESELL bin

ich für die Durchführung der numerischen Rechnungen zu Dank verpflichtet.

**Literatur:** [1] FRIND, G.: Z. angew. Phys. **12**, 231 (1960). — [2] MAECKER, H.: Z. Physik **157**, 1 (1959). — [3] MAYR, O. Arch. Elektrotechn. **37**, 588 (1943). — [4] WEIZEL, W., R. ROMPE: Theorie elektrischer Lichtbögen und Funken S. 66ff. Leipzig: Johann Ambrosius Barth 1949. — [5] SCHMITZ, G.: Z. Naturforsch. **5a**, 571 (1950). — [6] SCHMITZ, G.: Z. Naturforsch. **10a**, 495 (1955).

Dr. WOLFGANG FRIE,  
Forschungslaboratorium der Siemens-Schuckertwerke AG.,  
Erlangen

**D. C. Field Characteristics of Laminated Plastics**

By D. R. BHAWALKAR and S. M. KHANNA

With 4 figures in the text

(Eingegangen am 20. Juli 1960)

*Introduction*

Dielectrics have played quite an important part in our understanding of the solid state. Dielectrics show rather peculiar and interesting properties under various physical conditions. The phenomena of electrets is one of these interesting properties being studied in our laboratory. Plastics are known to give good electrets [1], and electrets prepared from plastics have certain mechanical advantages over those prepared from the usual carnauba wax, bees wax and resin mixtures. The plastic electrets can stand rough handling and can be given any desired shape by filling or turning. Before preparing electrets from any material it is necessary from physical point of view to study its electrical properties under similar conditions in order to correlate the characteristics observed when the electrets are formed. A large variety of plastics are available under different trade names. From available literature Delaron Laminated plastics were chosen as their specifications appear to be suited for the desired investigations. For the preliminary work CP3 Black Laminated Plastic from Delaron was selected and its electrical characteristics for D.C. fields were investigated. The Delaron Laminated Plastics are essentially phenolic resins, pressed along with paper to form a homogeneous board which is hard and can be worked mechanically.

*Apparatus and Method*

After some preliminary experiments to investigate the electrical conductivity at different electric fields, the following apparatus and method was found to give consistent and reproducible results. The plastic piece was kept in between two similar glass slabs having surface areas some what smaller than that of the sample. One slab was completely covered with tin foil, as tin foils are commonly used in electret preparation [2]. The other slab had a rectangular piece of tin foil of area 11.4 sq. cm and a gap of 0.5 cm was left all around this and the guard ring of tin foil. The tin foils served as electrodes for the electric field. For measuring the electric current through the specimen, an ultra-ohmmeter, manufactured by

Messrs. Beckman Instruments Inc. was used. The instrument was found to be very sensitive and could measure currents upto  $10^{-15}$  amps. The guard ring was earthed as usual.

Certain irregularities observed in the preliminary experiments were traced to the lack of good electrical contact all over the surface of the tin foils and the specimens. The weight of the glass slab alone was inadequate to ensure proper contact and hence additional weights had to be used. It was observed that the results were reproducible and consistent with a weight of 2 kg over the glass slab and hence in all subsequent experiments this weight was used. As the currents to be measured were extremely small the entire apparatus was kept in a closed metal box which was earthed and anhydrous  $\text{CaCl}_2$  was used inside the box to maintain dry atmosphere.

The main object of the present investigation was to study the dependence of electric conductivity of the field at room temperature, i.e.  $38^\circ\text{C}$  and hence it was necessary to change the field after each reading. It was found that if the original field is totally removed before introducing a field of different value, the results were not reproducible. Hence a potentiometer arrangement was made so that the electric field could be increased or decreased in small steps in a continuous manner without removing totally the field at any time during the experiment. The currents were measured after applying the field for two minutes in each case and the total time required for one set of experiments was also noted. Voltages upto 1080 volts were obtained from dry batteries, while for higher voltages a suitable power pack was used in series with the batteries.

In each experiment the electric field was changed continuously in small steps from zero to the maximum value of the field desired for the particular experiment. After it had reached the maximum value, the field was decreased in similar small steps to zero. The current corresponding to each value of the field was recorded with the field increasing and also decreasing. A set of such experiments was performed where the maximum voltage was increased gradually in each experiment to about 1400 volts.



### Results

Curves were drawn for the current " $i$ " through the sample and the corresponding voltage " $v$ " applied. The curve for field increasing was always different from the curve for field decreasing, and the appearance of these two curves in an experiment is something like the usual "hysteresis curve". The curve ( $i:v$ ) obtained with the field decreasing was always above the corresponding curve with the field increasing. A typical curve for voltages below 400 volts is given in Fig. 1.

The nature of the curve, however, altered when the voltage was above 400 volts. The current increased rather slowly initially, but above 400 volts the increase became rapid, giving a distinct change in the slope above 400 volts. A typical curve for this region is given in Fig. 2.

Simultaneously the values of electrical conductivity " $\sigma$ " were calculated from the dimensions of the sample.

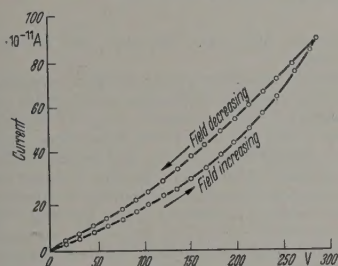


Fig. 1. The current vs. voltage for a Delaron laminated plastic in the region 0 to 300 volts

The conductivity was of the order of  $10^{-11} \text{ ohm}^{-1}$ . From the curves drawn for  $\sigma$  and the applied voltage it is apparent that there is a distinct change in the curve at about 425 volts, corresponding to a field of 65 kv/cm (Fig. 3). For fields above 2.65 kv/cm, the conductivity appears to be more or less linearly increasing with field. (Thickness of the sample  $\approx 0.16 \text{ cm}$ .)

Curves plotted on semilog papers for  $i$  vs.  $v$  show a straight line relation upto about 400 volts. At about 400 volts the curves show inflection and another straight line is obtained for higher volts upto 1400, the maximum used in the present investigations.

It is easy to calculate the power absorbed by the sample from the experimental values of  $i$  and  $v$ . The curve in Fig. 4 shows the relation between the logarithm of the power consumed and the maximum voltage applied in the particular set of experiments.

### Discussion

Deviations from OHM's law are well known in dielectrics and ionic crystals [3]. In the case of KCl, for example, deviations from OHM's law occur for fields greater than 10 to 20 kv/cm [4]. In the case of Plexiglass, MUNICK has also observed results similar to ours [5]. The behaviour of Rutile under high electric fields has been investigated by SKANAVI and others, with results of similar nature [6]. In the present investigations, though the plastic was laminated with paper, it is, therefore, not surprising that the general nature of the results should be similar to that of others in material similar to plastics, with the difference

that we have obtained the deviations at much lower voltages. Taking into account the nature of the material used by us this result is not surprising.

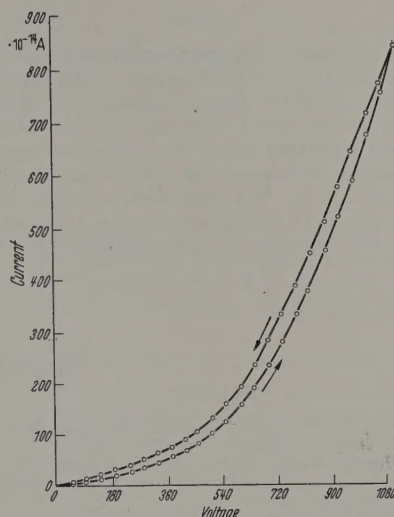


Fig. 2. The current vs. electric field for a Delaron laminated plastic in the region 0 to 1080 volts

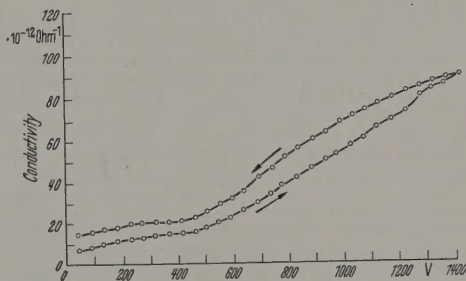


Fig. 3. Curve showing the relation between the conductivity  $\sigma$  and the voltage applied

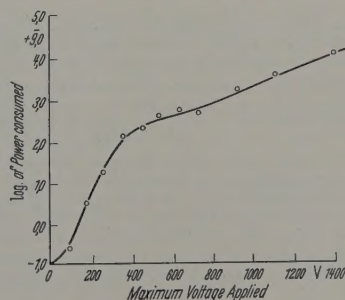


Fig. 4. Curve showing the relation between the logarithm of the power consumed and the maximum voltage applied

The relation between the current and the voltage can be represented in two parts as follows:

$$i_1 = a \cdot v^n \quad \text{for } v < 400 \text{ volts,} \quad (1)$$

$$i_2 = b \cdot e^{cv} \quad \text{for } v > 400 \text{ volts.} \quad (2)$$

Similar results have been obtained by other workers for different materials [7]. The second part of



the current  $i_2$  (equation 2 above) is probably due to the break down of the plastic material at higher electric fields.

### Abstract

The D.C. electric characteristics of Delaron CP3 Black Laminated Plastic were investigated upto 1400 volts. If the voltage is gradually increased in regulated steps upto a certain voltage, and then decreased in similar steps, the current-voltage curve with voltage decreasing lies above the curve with voltage increasing. The conductivity remains more or less constant upto about 2,65 kv/cm and then increases sharply with increase in electric field strength. Corre-

sponding sharp change is also observed in the power consumed. A possible explanation of this phenomenon is given.

**References:** [1] WEIDER, H. H., and KAUFMANN: J. Appl. Phys. **24**, 156 (1953). — [2] GUTMAN, F.: Rev. Mod. Phys. **20**, 457 (1948). — [3] MOTT, N. F., and R. W. GURNEY: Electronic Processes in Ionic Crystals. Oxford: Clarendon Press 1940. — [4] HIPPEL, A. v.: Phys. Rev. **54**, 1096 (1938). YAMANAKA, C., and T. SUIA: J. Phys. Soc. Jap. **8**, 2 (1953). — [5] MUNICK, R. J.: J. Appl. Phys. **28**, 1302 (1957). — [6] SKANAVI, G. I et al.: Dokl. Akad. Nauk USSR. **76**, 76 (1951). — [7] INUISHI, Y., and D. A. POWERS: J. Appl. Phys. **28**, 1017 (1957).

Prof. Dr. R. BHAWALKAR, S. M. KHANNA  
Dept. of Physics, University of Saugar,  
Saugar (M.P.), India

## Buchbesprechungen

Schütte, K.: **Beweistheorie**. Berlin-Göttingen-Heidelberg: Springer 1960. X, 355 S. Geb. DM 48.—

Um den Leser in die Problemstellung einzuführen, die den Inhalt seines Buches bildet, betrachtet Verf. im Beginn der Einleitung folgende beiden Sätze:

I. Jede gerade Zahl  $g > 2$  läßt sich als Summe von zwei Primzahlen darstellen.

II. Es gibt eine gerade Zahl  $g_0 > 2$ , die sich nicht als Summe von zwei Primzahlen darstellen läßt.

Zum Beweis des Satzes I ist ein allgemeines Verfahren anzugeben, durch das jeder geraden Zahl  $g > 2$  zwei Primzahlen  $p(g)$  und  $q(g)$  so zugeordnet werden, daß sich die Gleichung  $g = p(g) + q(g)$  für alle geraden Zahlen  $g > 2$  bestätigen läßt.

Um den Satz II zu beweisen, hat man eine gerade Zahl  $g_0 > 2$  anzugeben, von der man erkennen kann, daß sie sich nicht als Summe von zwei Primzahlen darstellen läßt.

Aus der Annahme, daß die Aufgabe I unlösbar sei, kann man nicht darauf schließen, daß sich eine Zahl  $g_0$ , wie sie die Aufgabe II fordert, tatsächlich angeben läßt. Ebenso wenig kann man aus der Annahme, daß die Aufgabe II unlösbar sei, darauf schließen, daß sich ein allgemeines Verfahren zur Lösung der Aufgabe I angeben läßt. Das ist der Standpunkt von BROUWER, demgemäß es keinen unmittelbaren Sinn hat, das klassische logische Prinzip des tertium non datur, nach dem entweder eine Aussage oder ihr logisches Gegenteil richtig ist, für mathematische Aussagen allgemein als zutreffend anzunehmen.

Gibt man aber dieses Prinzip als Beweismittel auf, so verliert man die Berechtigung zu indirekten Beweisführungen, die man in der klassischen Mathematik nicht entbehren kann. Um den Bestand der klassischen Mathematik in einer logisch einwandfreien Weise zu retten, bleibt nur die Möglichkeit, die mathematischen Sätze nicht auf tatsächliche Beweisbarkeit, sondern auf eine formale Herleitbarkeit zu beziehen. Diese Herleitbarkeit muß axiomatisch so festgelegt werden, daß sie den Grundsätzen der klassischen Mathematik genügt. Dieser Herleitbarkeitsbegriff braucht nicht sinnvoll interpretiert zu werden, wohl aber ist seine formale Zulässigkeit durch einen Widerspruchsfreiheitsbeweis zu rechtfertigen. Damit ergibt sich das von HILBERT aufgestellte Programm, die Mathematik in ihrer klassischen Gestalt als widerspruchsfrei nachzuweisen.

Die Theorie, die diese Aufgabe lösen soll, wurde von HILBERT als Beweistheorie bezeichnet. Der Gegenstand einer beweistheoretischen Untersuchung ist eine mathematische Theorie, die nicht nur mit ihren mathematischen Begriffen und Axiomen, sondern auch mit den in ihr zugelassenen logischen Grundbegriffen und Schlußweisen genau festgelegt ist. Die Begriffe und die Sätze der zu untersuchenden Theorie werden durch ein formales System dargestellt und ohne Bezugnahme auf ihre Bedeutung nur formal behandelt, während die beweistheoretische Untersuchung auf die logische Bedeutung ihrer Begriffe und Schlußweisen angewiesen ist. Der formalen Theorie wird also eine sinnvolle Beweistheorie

gegenübergestellt, die von HILBERT als Metamathematik bezeichnet wurde.

Da die problematische Gebiete der Mathematik begründet soll, muß sie ihre eigenen Methoden auf Begriffe und Schlußweisen beschränken, die außerhalb dieser Problematik liegen also in erster Linie auf sog. finite Methoden. Diese stützen sich nur auf elementare logische und mathematische Beziehungen kombinatorischer Art, die als Voraussetzung einer jeden theoretischen Untersuchung gebraucht werden und aus allgemein als zulässig anerkannt sind. Bei einem finiten Beweis darf das tertium non datur nicht auf Aussagen über unendliche Gesamtheiten angewendet und ein Existenzsatz nur dann als gültig benützt werden, wenn sich der Gegenstand dessen Existenz behauptet wird, tatsächlich aufweisen läßt.

Durch die Untersuchungen von GÖDEL wurde festgestellt, daß die engsten finiten Methoden nicht ausreichen, um die vom Hilbertschen Programm geforderten Widerspruchsfreiheitsbeweise durchzuführen. Wie GENTZEN gezeigt hat, kommt man mit einer transfiniten Induktion aus, die zwar über die gewöhnliche vollständige Induktion hinausgeht, aber noch einen gewissen konstruktiven Charakter hat.

Der Inhalt des vorliegenden Buches ist eine systematische Darstellung der wichtigsten Ergebnisse, die bisher im Sinne des Hilbertschen Programms erzielt wurden. Auf die Entwicklung der logischen Grundlagen folgt eine konstruktive Erklärung eines bestimmten Bereichs der Ordnungszahlen, wie sie in dem Widerspruchsfreiheitsbeweis der Zahlentheorie von GENTZEN gebraucht werden. Dieser wird in seinen wesentlichen Zügen im nächsten Kapitel vorgeführt. Da die formalen Systeme grundsätzlich unvollständig sind, geht Verf. hierauf zu einem halbformalen System der Zahlentheorie über, in dem eine Schlußregel mit unendlich vielen Prämissen auftritt. In den höheren Systemen des letzten Teiles des Buches kommen allgemeine mengentheoretische Beziehungen zum Ausdruck. Die Kapitel dieses Teiles behandeln das widerspruchsfreie System einer typenfremen Logik von ACKERMANN und der verzweigten Typenlogik von LORENZEN, ferner widerspruchsfreie Erweiterungen dieser Systeme und ein widerspruchsfreies Analysis im Rahmen der typenfremen Logik von ACKERMANN. Im Schlußparagrafen werden die zur Zeit vorliegenden Möglichkeiten erörtert, sich mit nachweisbar widerspruchsfreien Systemen der klassischen Analysis zu nähern.

Das Buch setzt keine speziellen Kenntnisse der Mathematik oder der formalen Logik voraus, wohl aber eine gewisse Übung im abstrakten logischen Denken. Alle Beweise der mathematischen Sätze, die man hier braucht, werden entweder vollständig ausgeführt oder so weit skizziert, daß ihre genaue Durchführung klargestellt ist.

Es ist dem Verf. sehr zu danken, daß er die im Sinne des Hilbertschen Programms durchgeführten Untersuchungen, die bisher größtenteils nur in Zeitschriftenaufsätzen vorlagen, in seinem Buch zu einer möglichst einheitlichen Systematik verbunden hat.

J. LENSE